

Zur Relevanz der
Thermoosmose
für den
Radionuklidtransport
in einem Endlager für
wärmeproduzierende
radioaktive Abfälle

Zur Relevanz der
Thermoosmose für den
Radionuklidtransport in einem
Endlager für wärmeproduzie-
rende radioaktive Abfälle

M. Navarro

Juni 2004

Auftrags-Nr.: 835800

Anmerkung:

Dieser Bericht ist von der GRS im Auftrag des BMU im Rahmen des Vorhabens SR 2451 erstellt worden. Der Auftraggeber behält sich alle Rechte vor. Insbesondere darf dieser Bericht nur mit seiner Zustimmung zitiert, ganz oder teilweise vervielfältigt werden bzw. Dritten zugänglich gemacht werden.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung des Auftragnehmers wieder und muss nicht mit der Meinung des Auftraggebers übereinstimmen.

Abstract

Thermal osmosis is a flow of fluid driven by a temperature gradient. Thermal osmosis has a pronounced effect in clay-rich media and might therefore be a relevant transport process in a repository for heat producing radioactive wastes if clays are present in the engineered barrier or in the host rock. Several investigations have shown that thermal osmotic fluxes in a saturated repository might dominate diffusive as well as advective fluxes. Nevertheless, it is assumed at present, that effective thermal osmotic transport is impossible as soon as quasi-stationary flow conditions have established. This assumption has been justified by the fact that thermal osmotic fluxes give rise to opposing advective fluxes by which they are completely compensated in case of stationary flow conditions and absence of fluid sources within the flow domain. This mechanism of compensation stems from the mass conservation of the fluid. In the present report, it is shown by means of analytical and numerical calculations that the occurrence of compensating advective fluxes does not necessarily inhibit an effective thermal osmotic transport due to heat producing wastes. Further on, it is shown that the pre-conditions for such a transport can be fulfilled in repository systems. Considering the potentially high flux densities connected to thermal osmosis this leads to the conclusion that thermal osmosis might be a safety-relevant process even if quasi-stationary flow conditions have established due to stabilised pore water pressures. Further research and development is necessary to clarify the relevance of thermal osmosis for this evolutionary phase of a repository.

Zusammenfassung

Thermoosmose bezeichnet einen Fluidfluss aufgrund von Temperaturgradienten. Der thermoosmotische Effekt tritt besonders deutlich in tonigen Medien hervor, weshalb er in einem Endlager für wärmeproduzierende Abfälle, in dem Tone in der technischen Barriere oder im Wirtsgestein auftreten, ein potenziell relevanter Transportprozess ist. Verschiedene Arbeiten haben gezeigt, dass die thermoosmotischen Flüsse in einem gesättigten Endlagersystem sowohl die diffusiven als auch die advektiven Flüsse dominieren können. Dennoch wird derzeit davon ausgegangen, dass nach Eintreten quasistationärer Strömungsverhältnisse kein effektiver thermoosmotischer Transport mehr möglich ist. Dies wird dadurch begründet, dass thermoosmotische Flüsse entgegen gerichtete advektive Flüsse hervorrufen, durch die sie selbst vollständig kompensiert werden, wenn das betrachtete Gebiet frei von Fluidquellen ist und stationäre Strömungsverhältnisse herrschen. Dieser Kompensationsmechanismus ist eine Folge der Massenerhaltung des Fluids. Im vorliegenden Bericht wird anhand analytischer und numerischer Rechnungen gezeigt, dass das Auftreten kompensierender advektiver Flüsse nicht zwangsläufig einen effektiven thermoosmotischen Transport aufgrund wärmeproduzierender Abfälle unterbindet. Ferner wird gezeigt, dass die Voraussetzungen für einen solchen Transport in Endlagersystemen erfüllt sein können. In Anbetracht der potenziell hohen Flussdichten der Thermoosmose bedeutet dies, dass eine Sicherheitsrelevanz der Thermoosmose derzeit auch dann nicht ausgeschlossen werden kann, wenn nach weitgehender Stabilisierung der Porenwasserdrücke quasistationäre Strömungsverhältnisse eingetreten sind. Zur weiteren Klärung der Relevanz der Thermoosmose für diese Phase der Endlagerentwicklung sind weitere Forschungs- und Entwicklungsarbeiten erforderlich.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung und Zielsetzung	1
2	Thermoosmose	4
2.1	Definitionen und Mechanismen	4
2.2	Gesättigte Medien	5
2.3	Ungesättigte Medien	6
2.4	Fazit	7
3	Advective Kompensationsflüsse	8
3.1	Massenerhaltung	8
3.2	Stationäre Durchströmung	9
3.3	Stationäre Zirkulationsströmung	11
3.4	Interpretation früherer Arbeiten	13
3.5	Fazit	14
4	Möglichkeiten eines thermoosmotischen Transports in einem Endlager	15
4.1	Aquifere als Fluidquellen und -senken	15
4.2	Inhomogene hydraulische Durchlässigkeiten	16
4.2.1	Ausgedehnte permeable Strukturen	17
4.2.2	Kleinräumige permeable Strukturen	18
4.3	Fazit	20
5	Numerisches Modell	21
5.1	Modellbeschreibung	21
5.2	Wirkung von hochpermeablen Strukturen und Festpotenzialrändern	24
5.2.1	Fall A: Strömung entlang einer hochpermeablen Struktur	24
5.2.2	Fall B: Strömung entlang eines Festpotenzialrandes	25
5.3	Thermoosmotische Flüsse in einem Endlager	27
5.3.1	Parameterwahl	27
5.3.2	Fall 1: Endlager in einer Tonschicht	29

5.3.3	Fall 2: Quadratische Einlagerungskammer	35
5.3.4	Fall 3: Langgestreckte Einlagerungskammer	38
5.4	Diskussion	40
5.5	Fazit	43
6	Schlussfolgerung	44
7	Literatur	47
Anhang A	Modellbeschreibung	50
Anhang B	Modelltests	52
7.1	Advektiver Fluss	52
7.2	Thermoosmotischer Fluss	53
7.3	Diffusion	54

1 Einleitung und Zielsetzung

Ton ist in vielen Endlagerkonzepten aufgrund seiner chemischen Reaktivität und geringen hydraulischen Durchlässigkeit ein wichtiges Medium zur Rückhaltung von Radionukliden. International wird die Möglichkeit der Endlagerung in tonigen Formationen seit Jahren intensiv erforscht. Im Gegensatz dazu sahen die bisherigen deutschen Endlagerkonzepte eine Endlagerung der radioaktiven Abfälle in Salzgesteine vor. Die Bundesregierung erklärte in ihrer Vereinbarung mit den Energieversorgungsunternehmen vom 14. Juni 2000 /BMU 00/ die Notwendigkeit, die Eignungskriterien für ein Endlager fortzuentwickeln und die Konzeption für die Endlagerung radioaktiver Abfälle zu überarbeiten. Dabei ist u.a. die Eignung von Ton als Wirtsgestein zu untersuchen. Hierzu ist es erforderlich, den aktuellen Stand von Wissenschaft und Technik zur Problematik des Radionuklidtransportes in tonigen Gesteinen zu ermitteln. In diesem Rahmen wird mit dem vorliegenden Bericht eine Untersuchung zur Sicherheitsrelevanz der Thermoosmose vorgelegt.

Die semi-permeablen Eigenschaften von Tonen und die sehr geringen Porendurchmesser haben zur Folge, dass neben der Advektion und Diffusion eine Anzahl weiterer Transportprozesse wirksam werden bzw. eine nicht mehr zu vernachlässigende Größenordnung erreichen. So können hydraulische, chemische, thermische, und elektrische Potenzialgradienten einen Transport von Fluid, Lösungskomponenten, Wärme und Ladungsträgern erzeugen. Generell kann dabei jeder Potenzialgradient jeden Transportvorgang auslösen, so dass eine Matrix-Darstellung der möglichen Transportphänomene nahe liegt (Onsager-Matrix, Tab. 1-1). Die Phänomene auf der Diagonalen der Onsager-Matrix werden *direkte*, die auf den Nebendiagonalen *gekoppelte* Fließphänomene genannt. Durch die gekoppelten Fließphänomene ist jeder Potenzialgradient in der Lage, alle übrigen Potenzialgradienten zu erzeugen, auch wenn sie nicht explizit vorgegeben werden. Somit kann grundsätzlich die Vorgabe eines einzelnen Potenzialgradienten genügen, um Flüsse aufgrund anderer Potenzialgradienten in Gang zu setzen.

Tab. 1-1 Matrix der direkten und gekoppelten Fließphänomene („Onsager-Matrix“) – „Fluid“ ist die Summe der mobilen Fluidkomponenten im Falle der Chemoosmose und Wasser im Falle der Elektroosmose. „Lösungskomponente“ ist ein Ion im Falle der Hyperfiltration und Elektrophorese.

		Potenzialgradient (thermodynamische Kraft)			
		thermischer	hydraulischer	chemischer	elektrischer
thermodynamischer Fluss von	Wärme	Wärmeleitung	Thermische Filtration	Dufour Effekt	Peltier-Effekt
	Fluid	Thermoosmose	Advektion	Chemoosmose	Elektroosmose
	Lösungskomponenten	Thermo-Diffusion (Soret-Effekt)	Hyperfiltration	Diffusion	Elektrophorese
	Ladungsträgern	Seebeck- oder Thompson-Effekt	Rouss Effekt	Diffusion & Membran-Potenzial	Elektrische Leitung

Thermoosmose ist der gekoppelte Transportprozess, der einen Fluidfluss aufgrund von Temperaturgradienten erzeugt. In einem Endlager für wärmeproduzierende Abfälle ist die Thermoosmose möglicherweise ein relevanter Transportmechanismus, weil sowohl hohe Temperaturgradienten als auch tonige Medien in Form der technischen Barriere oder des Wirtsgesteins auftreten.

Frühere Abschätzungen zur Größenordnung thermoosmotischer Flüsse unter Endlagerbedingungen haben gezeigt, dass diese die diffusiven und advektiven Flüsse dominieren können, die aufgrund der unter Endlagerbedingungen zu erwartenden Konzentrationsgradienten und hydraulischen Gradienten entstehen /CAR 84, CAR 85, HOR 96, SOL 99, SOL 01/. Diese Abschätzungen beinhalten allerdings große Unsicherheiten bezüglich der thermoosmotischen Durchlässigkeit, da sich nur eine relativ geringe Zahl von Experimenten mit dem thermoosmotischen Effekt in endlagerrelevanten tonigen Materialien beschäftigt.

Obwohl die genannten Abschätzungen die relative Stärke der thermoosmotischen Flüsse betonen, wird Thermoosmose für den Stofftransport in einem Endlager oft als vernachlässigbar angesehen. Die Ursache hierfür ist das Fehlen von Fluidquellen in der Nähe der Wärmequellen, so dass die von der Wärmequelle weggerichteten thermoosmotischen Flüsse dort zu einer Fluidentnahme und damit zu einer Absenkung des hydraulischen Potenzials führen. Als Folge setzen advektive Flüsse ein, die auf die

Wärmequelle zu gerichtet sind und die Transportwirkung der Thermoosmose vollständig kompensieren.

Dieser hydraulische Kompensationsmechanismus wurde von Oliver /OLI 86/ und Soler /SOL 99, SOL 01/ durch analytische und numerische Lösungen der zugrunde liegenden Strömungs- und Bilanzgleichungen für den stationären Fall untersucht. Beide Autoren kommen zu dem Schluss, dass eingelagerte Abfallbehälter, die von möglichen Fluidquellen isoliert sind, wegen der erwähnten advektiven Kompensationsflüsse keinen thermoosmotischen Transport verursachen können. Ein solcher Transport bliebe damit auf den instationären Fall beschränkt, worauf auch Carnahan /CAR 86/ hinweist. Weil in der anfänglichen instationären Phase der Endlagerentwicklung noch mit intakten Abfallbehältern und damit mit einer wirksamen Rückhaltung von Radionukliden zu rechnen ist, dürfte Thermoosmose demnach keine Rolle für den Radionuklidtransport spielen. Im „Features, Events and Processes Evaluation Catalogue for Argillaceous Media“ (FEPCAT) der NEA /MAZ 03/ wird diese Einschätzung geteilt, wobei jedoch nur auf die Arbeiten von Soler /SOL 99, SOL 01/ Bezug genommen wird.

In der vorliegenden Arbeit wird zunächst gezeigt, dass eine Wärmequelle in einem fluidquellenfreien Gebiet thermoosmotische Flüsse erzeugen kann, die nicht hydraulisch kompensiert werden. Die Relevanz der Thermoosmose für den Stofftransport in einem Endlager bleibt damit weiterhin zu prüfen, besonders in Anbetracht der potenziellen Dominanz der Thermoosmose gegenüber der Diffusion und Advektion unter Endlagerbedingungen. Anhand von Überlegungen zur eindimensionalen stationären thermoosmotisch-advectiven Strömung werden im Anschluss verschiedene Möglichkeiten eines thermoosmotisch induzierten Transports in einem Endlagersystem abgeleitet. Zur quantitativen Abschätzung des thermoosmotischen Transports wurde ein numerisches Modell für die 2-dimensionale stationäre thermoosmotisch-advective Strömung entwickelt. Die vereinfachenden Modellannahmen dienen insbesondere dazu, die Auswirkung advektiver Kompensationsflüsse zu beleuchten. Durch Anwendung des Particle-Tracking- und Random-Walk-Verfahrens werden die Transportwirkungen von Thermoosmose und Diffusion miteinander verglichen, wobei von einer zeitlich veränderlichen Wärmeproduktionsrate der Abfälle ausgegangen wird. Die Modellrechnungen werden exemplarisch für eine Versatzkammer (1 m- bis 10 m-Skala) und ein Endlagersystem (100 m- bis 1000 m-Skala) unter Betrachtung vereinfachter Geometrien und Wärmequellen durchgeführt. Die Ergebnisse der Modellrechnungen werden abschließend hinsichtlich ihrer Realitätsnähe und Sicherheitsrelevanz diskutiert.

2 Thermoosmose

2.1 Definitionen und Mechanismen

Thermoosmose wird als der durch einen Temperaturgradienten angetriebene Fluss eines Fluids definiert /DER 87/. Das Gesetz für den thermoosmotischen Transport wird analog zum Darcy'schen Gesetz für die advective Flusssdichte formuliert:

$$J_t = -k_t \cdot \nabla T \quad 2.1$$

mit der thermoosmotischen Volumenflussdichte J_t in [m/s], der thermoosmotischen Durchlässigkeit k_t in [$\text{m}^2\text{K}^{-1}\text{s}^{-1}$] und der Temperatur T in [K]. Im Allgemeinen liegt eine Temperaturabhängigkeit der thermoosmotischen Durchlässigkeit k_t vor. In natürlich vorkommenden Tonen ist k_t positiv, d.h. dass ein Fluss von Heiß nach Kalt stattfindet.

Im Sinne der oben gegebenen Definition können verschiedene Prozesse für den thermoosmotischen Effekt verantwortlich sein. Nach Derjaguin et al. /DER 87/ wird die Thermoosmose durch Unterschiede zwischen der spezifischen Enthalpie des freien Wassers und der spezifischen Enthalpie des Wassers im elektrostatischen Einflussbereich der Mineraloberflächen ausgelöst. Daneben werden auch thermisch induzierte chemische Potenzialgradienten und eine Temperaturabhängigkeit der Verteilung der Wasserstoffbrückenbindungen als mögliche Ursachen diskutiert /CAR 65, CAR 66/.

Ein Fluidfluss aufgrund von Temperaturgradienten wird üblicherweise nur in gesättigten Medien als Thermoosmose bezeichnet, wobei freie Konvektionsströmungen, die durch temperaturbedingte Dichteunterschiede entstehen, ausgenommen werden. In ungesättigten Medien wird der durch Temperaturgradienten angetriebene Fluidtransport durch verschiedene Gastransportprozesse (temperaturabhängige Änderung des Gasdruckes, Thermodiffusion, Knudsenströmung /YON 90/) beeinflusst und daher nur selten als Thermoosmose bezeichnet. Dennoch ist die oben gegebene Definition grundsätzlich auch auf ungesättigte Medien anwendbar. In diesem Falle wären Fluidflüsse, die durch eine Temperaturabhängigkeit der Oberflächenspannungen induziert werden /PHI 57/, zur Thermoosmose hinzuzurechnen.

Neben der erwähnten Definition ist auch eine engere Definition der Thermoosmose möglich. Im Sinne der irreversiblen Thermodynamik bezeichnet die Thermoosmose

das inverse Transportphänomen zur thermischen Filtration. Es ist anzunehmen, dass dieser Zusammenhang nicht für einen Thermoosmose-Begriff gilt, der Kopplungen mit Gastransportprozessen oder chemischen Potenzialen beinhaltet. Im Sinne der irreversiblen Thermodynamik dürfte sich die Thermoosmose daher auf den von Derjaguin et al. /DER 87/ beschriebenen Prozess beschränken.

Bei vielen praktischen Anwendungen interessiert weniger der Fluid- sondern vielmehr der kombinierte Wassertransport in der Gas- und Fluidphase. Mit Einschränkungen lässt sich Gleichung (2.1) über die Definition des Thermoosmose-Begriffes hinaus auch auf den kombinierten Wassertransport in Fluid- und Gasphase übertragen. Zur Vereinfachung der Terminologie werden daher im vorliegenden Bericht alle Flüsse aufgrund von Temperaturgradienten, die sich ausreichend gut durch Gleichung (2.1) beschreiben lassen, unter dem Begriff der Thermoosmose zusammengefasst. Es ist zu erwarten, dass Gleichung (2.1) sich nicht auf ungesättigte, quellfähige Medien wie Bentonit anwenden lässt, in denen verschiedene Gastransport-, Fluidtransport- und Deformationsprozesse miteinander wechselwirken /CAR 89, THO 92/.

2.2 Gesättigte Medien

Die thermoosmotische Durchlässigkeit gesättigter Tone schwankt um mehrere Größenordnungen. Dirksen /DIR 69/ ermittelte für Na-Bentonit und Na-Kaolinit Durchlässigkeiten zwischen $10^{-14} \text{ m}^2\text{K}^{-1}\text{s}^{-1}$ und $3 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2\text{K}^{-1}\text{s}^{-1}$ in Abhängigkeit von der Temperatur und dem Kompaktionsgrad der Proben. Srivastava und Avasthi /SRI 75/ hingegen fanden für gesättigten Kaolinit um drei Größenordnungen höhere thermoosmotische Durchlässigkeiten von $2 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2\text{K}^{-1}\text{s}^{-1}$ (mittlere Temperatur: 38,4 °C, Porosität: 50%).

Mit zunehmendem Kompaktionsgrad der Tone ist eine Abnahme der thermoosmotischen Durchlässigkeit zu verzeichnen. Dirksen ermittelte für Na-Kaolinit-Proben eine Abnahme der thermoosmotischen Durchlässigkeit von $9,7 \cdot 10^{-14} \text{ m}^2\text{K}^{-1}\text{s}^{-1}$ auf $1,2 \cdot 10^{-14} \text{ m}^2\text{K}^{-1}\text{s}^{-1}$ wenn die Wassergehalte durch die Kompaktion von 49% auf 15% verringert wurden /DIR 69/. Auf den ersten Blick widersprüchlich erscheinen die Ergebnisse von Derjaguin et al. für poröse Gläser /DER 87/. Diese stellten bei Verringerung der Porenradien eine *Zunahme* der thermoosmotischen Durchlässigkeit fest, was sie durch das verstärkte Überlappen von Grenzschichten und die damit einhergehende Erhöhung der spezifischen Enthalpie in diesen Schichten erklärten. Die

Experimente von Dirksen und Derjaguin et al. unterscheiden sich jedoch dahingehend, dass die Verkleinerung der Porenradien im ersten Fall durch Kompaktion bewirkt wurde, im zweiten Fall durch Verwendung feinerer Glaskörner. Falls die Kompaktion der von Dirksen untersuchten Tone eine Verstärkung des thermoosmotischen Effektes bewirkt haben sollte, so dürfte diese Wirkung durch die Verschlechterung der Porenkonnektivität überlagert worden sein.

Die Temperaturabhängigkeit der thermoosmotischen Durchlässigkeit ist stark materialabhängig. In porösen Gläsern beobachteten Derjaguin et al., dass die thermoosmotische Durchlässigkeit im Übergang von 10° C auf 60° C auf Null absank /DER 87/. Experimente mit Ton zeigten dagegen entweder ein gegenläufiges Verhalten oder aber Temperaturinsensitivität: So beobachteten Srivastava und Avasthi /SRI 75/ für wassergesättigten Kaolinit keinerlei Temperaturabhängigkeit der thermoosmotischen Durchlässigkeit (bei einer mittleren Temperatur von 38,4 °C, Temperaturdifferenzen zwischen 1,2 °C und 29,1 °C und einer Probenlänge von 8,5 cm). Auch Dirksen fand für gesättigten Na-Bentonit eine konstante thermoosmotische Durchlässigkeit von $3,2 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2\text{K}^{-1}\text{s}^{-1}$ (bei einer mittleren Temperatur von 25 °C, Temperaturdifferenzen zwischen 2 °C und 10 °C und einer Probenlänge von 9,2 mm). Lediglich bei gesättigten Na-Kaolinit-Proben mit einem Wassergehalt von 49% nahm die thermoosmotische Durchlässigkeit von $9,7 \cdot 10^{-14} \text{ m}^2\text{K}^{-1}\text{s}^{-1}$ auf $1,6 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2\text{K}^{-1}\text{s}^{-1}$ zu, wenn die Temperaturdifferenz von 10 °C auf 30 °C erhöht wurde.

2.3 Ungesättigte Medien

Einen Vergleich verschiedener Arbeiten zum Wassertransport in ungesättigten Böden wurde von Letey /LET 68/ vorgenommen. Bei Saugspannungen über 6 kPa erwies sich die thermoosmotische Durchlässigkeit (im weiteren Sinne) als relativ unabhängig von der Saugspannung. Da sich das temperaturabhängige Verhalten der thermoosmotischen Durchlässigkeit näherungsweise durch die Temperaturabhängigkeit des Gasdruckes berechnen ließ, schloss Letey, dass der Wassertransport überwiegend in der Gasphase stattgefunden haben musste. Auf eine mittlere Gastemperatur von 22 °C bezogen ergaben die betrachteten Versuchsreihen einen Mittelwert der thermoosmotischen Durchlässigkeit von ca. $8 \cdot 10^{-11} \text{ m}^2\text{K}^{-1}\text{s}^{-1}$. Bei Unterschreiten der Saugspannungen von 6 kPa fiel die thermoosmotische Durchlässigkeit ab, während ihre Temperaturabhängigkeit zunahm. Letey interpretierte dieses Verhalten durch den verstärkten Transport in der fluiden Phase.

2.4 Fazit

Die thermoosmotische Durchlässigkeit gesättigter Bentonit- und Kaolinit-Proben lag im Wertebereich zwischen ca. $10^{-14} \text{ m}^2\text{K}^{-1}\text{s}^{-1}$ und ca. $10^{-10} \text{ m}^2\text{K}^{-1}\text{s}^{-1}$ /DIR 69, SRI 75/. Wird für die thermoosmotische Durchlässigkeit dieser Wertebereich zugrunde gelegt, so können die thermoosmotischen Flüsse die advektiven und diffusiven Flüsse dominieren, die aufgrund der unter Endlagerbedingungen zu erwartenden hydraulischen Gradienten und Konzentrationsgradienten entstehen /SOL 99/.

Die betrachteten experimentellen Arbeiten zeigen, dass die thermoosmotische Durchlässigkeit mit zunehmendem Kompaktionsgrad der Tone sinkt, vermutlich wegen der Verschlechterung der Porenkonnektivität. In gesättigten Medien kann die thermoosmotische Durchlässigkeit mit fallender Temperatur sinken, jedoch wiesen in den hier betrachteten Laborversuchen nicht alle Tone dieses Verhalten auf.

Ein Wasserfluss aufgrund von Temperaturgradienten tritt auch in ungesättigten Tonen auf. Bei geringen Wassergehalten und damit hohen Saugspannungen findet der Wassertransport überwiegend in der Gasphase statt, wobei die thermoosmotische Durchlässigkeit (im weiteren Sinne) hauptsächlich von der Temperatur abhängt. Bei hohen Wassergehalten und niedrigen Saugspannungen wird der Transport in der Fluidphase wichtiger. Für Saugspannungsbereiche, in denen der Gastransport dominiert, wurde für verschiedene Böden ein Mittelwert der thermoosmotischen Durchlässigkeit von ca. $8 \cdot 10^{-11} \text{ m}^2\text{K}^{-1}\text{s}^{-1}$ bezogen auf eine mittlere Gastemperatur von 22 °C gefunden.

3 **Advektive Kompensationsflüsse**

3.1 **Massenerhaltung**

Durch den thermoosmotischen Fluidtransport können entgegen gerichtete advektive Flüsse ausgelöst werden, die die Transportwirkung der Thermoosmose mindern oder ganz aufheben. Das Auftreten solcher advektiver Kompensationsflüsse ergibt sich aus der Massenerhaltung des Fluids. Ist der thermoosmotische Zufluss in ein quellenfreies Gebiet ungleich dem thermoosmotischen Abfluss, so ändert sich im Gebiet mit der Zeit die Fluidmasse. Dies bewirkt dort eine Änderung des hydraulischen Potentials, die einen advektiven Fluss in Gang setzt, der dem thermoosmotischen Fluss entgegen gerichtet ist. Ist der stationäre Zustand erreicht, so halten sich thermoosmotischer Abstrom und advektiver Zustrom die Waage.

Zur mathematischen Beschreibung dieses Sachverhaltes wird die thermoosmotische Flussdichte

$$J_t = -k_t \cdot \nabla T \tag{3.1}$$

sowie die advektive Flussdichte

$$J_h = -k_h \cdot \nabla h \tag{3.2}$$

betrachtet. Hierbei bezeichnet k_t die thermoosmotische Durchlässigkeit in $[\text{m}^2\text{K}^{-1}\text{s}^{-1}]$, k_h die hydraulische Durchlässigkeit in $[\text{ms}^{-1}]$, h das hydraulische Potenzial in $[\text{m}]$ und T die Temperatur in $[\text{K}]$. Die Flussdichten J_h und J_t sind Volumenflussdichten und besitzen die Einheit $[\text{ms}^{-1}]$.

Die Massenerhaltung kann näherungsweise durch eine Erhaltungsgleichung für die Fluidvolumina

$$\text{div}(J_h + J_t) = 0 \tag{3.3}$$

beschrieben werden, da die Temperaturabhängigkeit der Wasserdichte relativ gering ist. So erfolgt bei Temperaturabsenkung von 100 °C auf 4 °C unter Atmosphärendruck eine nur ca. 4-prozentige Dichteerhöhung. Die Annahme einer variablen Fluidichte ist

auch deshalb nicht erforderlich, weil eine durch Temperaturgradienten ausgelöste freie Konvektion nicht Gegenstand der Betrachtung ist. Da die hier betrachteten Mechanismen der Thermoosmose und ihrer advektiven Kompensation unabhängig vom Mechanismus der freien Konvektion sind, gelten die nachfolgenden Überlegungen auch für Systeme, in denen freie Konvektion auftritt.

Die Wirkung advektiver Kompensationsflüsse soll im Folgenden für eindimensionale Fließsysteme anhand der Gleichungen (3.1) – (3.3) betrachtet werden. Insbesondere soll aufgezeigt werden, unter welchen Bedingungen thermoosmotische Flüsse auftreten, die nicht hydraulisch kompensiert werden und somit transportwirksam sind.

3.2 Stationäre Durchströmung

Im Folgenden wird die stationäre thermoosmotisch-advective Durchströmung eines eindimensionalen Gebietes betrachtet. Das eindimensionale Modell dient als Ausgangspunkt für die im nächsten Abschnitt folgende Betrachtung von Zirkulationsströmungen. Es demonstriert ferner die Entstehung advektiver Kompensationsflüsse, die zur Folge haben, dass der stationäre Gesamtfluss durch ein offenes, quellenfreies Gebiet nur durch die Temperaturen und hydraulischen Potenziale an den Gebietsrändern bestimmt wird. Der Beweis, dass dies auch im mehrdimensionalen Fall gilt, soll an dieser Stelle nicht geführt werden.

Betrachtet wird ein eindimensionales Gebiet $[x_0; x_1]$ (Abb. 3.1), in dem konstante hydraulische und thermoosmotische Durchlässigkeiten herrschen (es wird von einer konstanten Viskosität ausgegangen). Über das Gebiet sei ein Temperaturfeld $T(x)$ gelegt, das durch eine Wärmequelle an beliebiger Stelle innerhalb oder außerhalb des Gebietes verursacht sein soll. Für die Temperaturen an den Rändern x_0 und x_1 des Gebietes wird $T(x_0) =: T_0$ und $T(x_1) =: T_1$ definiert. Das hydraulische Potenzial $h(x)$ im Gebiet darf sich als Reaktion auf die thermoosmotischen Flüsse verändern. An den Rändern sei $h(x_0) =: h_0$ und $h(x_1) =: h_1$.

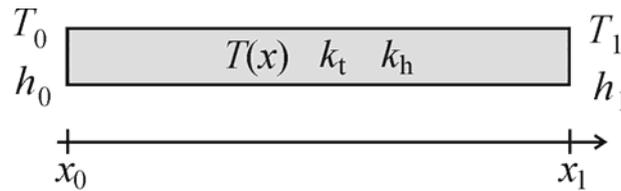


Abb. 3.1: Eindimensionales Modell der stationären thermoosmotisch-advektiven 1-Phasen-Strömung.

Zur Ermittlung des Strömungsfeldes werden die Gleichungen (3.1) – (3.3) für den eindimensionalen Fall verwendet. Durch Einsetzen von (3.1) und (3.2) in (3.3), zweimaliges Integrieren nach dx und Bestimmung der Integrationskonstanten aus den Randwerten erhält man die hydraulische Potenzialverteilung im Gebietsinnern, womit sich mit (3.1) die advective Flussdichte

$$J_h(x) = \underbrace{-k_h \cdot \frac{h_1 - h_0}{x_1 - x_0}}_{\substack{\text{Durch die hydraulische} \\ \text{Potenzialdifferenz} \\ \text{angetriebener} \\ \text{advektiver Fluss}}} + k_t \cdot \underbrace{\left(\frac{\partial T}{\partial x}(x) - \frac{T_1 - T_0}{x_1 - x_0} \right)}_{\substack{\text{Durch Temperaturgradienten} \\ \text{angetriebener} \\ \text{advektiver Kompensationsfluss}}, \quad (3.4)$$

ergibt, die sich aus einer hydraulischen und einer thermoosmotischen Reaktion zusammensetzt. Letztere stellt den durch die Thermoosmose ausgelösten advektiven Kompensationsfluss dar. Für die Gesamtflussdichte J_g durch das Gebiet ergibt sich damit

$$J_g = J_h(x) + J_t(x) = -k_h \cdot \frac{h_1 - h_0}{x_1 - x_0} - k_t \cdot \frac{T_1 - T_0}{x_1 - x_0}. \quad (3.5)$$

Der advective Kompensationsfluss

$$k_t \cdot \left(\frac{\partial T}{\partial x}(x) - \frac{T_1 - T_0}{x_1 - x_0} \right)$$

stellt sich also so ein, dass der Gesamtfluss durch das System nur noch durch die Differenzen der Randwerte $h_1 - h_0$ und $T_1 - T_0$ und die Durchlässigkeitswerte k_h und k_t kontrolliert wird. Das Temperaturfeld im Innern des Gebietes hat keinen Einfluss auf die Durchströmung; die thermoosmotischen Flüsse, die es auslöst, werden hydraulisch vollständig kompensiert.

Erzeugt eine Wärmequelle eine Temperaturdifferenz an den Rändern x_0 und x_1 , so bestimmt die Art der Gebietsränder, ob durch die Thermoosmose eine Durchströmung des Gebietes veranlasst wird. Im trivialen Fall mit mindestens einem geschlossenen Rand findet kein Fluss statt und die Potenzialdifferenz $h_1 - h_0$ verändert sich so, dass eine vollständige hydraulische Kompensation des thermoosmotischen Flusses stattfindet. Liegen an den Rändern Fluidquellen bzw. -senken mit festem hydraulischem Potenzial vor, so kommt es zu einer Durchströmung nach Gleichung (3.5).

Um eine Durchströmung durch Thermoosmose in Gang zu setzen, sind Fluidquellen und -senken erforderlich. Fluidquellen und -senken können bei Fluidentnahme bzw. -Zufuhr ihr hydraulisches Potenzial verändern. Dieses Verhalten kann z.B. durch Randbedingungen 3. Art für h_0 und h_1 beschrieben werden:

$$h_0 = h_0^* - J_g \cdot R_0 \quad \text{und} \quad h_1 = h_1^* + J_g \cdot R_1 \quad (3.6)$$

Dabei sind R_0, R_1 die „inneren Strömungswiderstände“ (in [s]) der Fluidquellen bzw. -senken, h_0^*, h_1^* ihre hydraulischen Potenziale und h_0, h_1 die hydraulischen Potenziale an den Gebietsrändern. Hiermit ergibt sich folgender Gesamtfluss:

$$J_g = \left(-k_h \cdot \frac{h_1^* - h_0^*}{x_1 - x_0} - k_t \cdot \frac{T_1 - T_0}{x_1 - x_0} \right) \cdot \left(1 + \frac{R_0 + R_1}{x_1 - x_0} k_h \right)^{-1}. \quad (3.7)$$

Strebt demnach einer der inneren Strömungswiderstände R_0, R_1 gegen Unendlich, so erhält man den Fall des geschlossenen Randes. Bei verschwindenden inneren Strömungswiderständen erhält man den Fall zweier Festpotenzialränder mit maximaler Durchströmung des Gebietes. Es lässt sich festhalten, dass das Vorhandensein von Fluidquellen mit endlichen inneren Strömungswiderständen genügt, um eine thermoosmotisch bedingte Durchströmung zu erzeugen. Das Vorhandensein von Festpotenzialrändern ist hierzu nicht erforderlich.

3.3 Stationäre Zirkulationsströmung

Anhand der vorangegangenen Überlegungen zu eindimensionalen Strömungssystemen soll gezeigt werden, dass es im Innern eines quellenfreien Gebietes zu Zirkulationsströmungen kommen kann, wenn inhomogene thermoosmotische oder hydraulische Durchlässigkeiten vorliegen.

Zur Ermöglichung von Zirkulationsströmungen werden zwei eindimensionale Fließsysteme über ihre Ränder verbunden, so dass sich ein geschlossener Kreislauf bildet (Abb. 3.2).

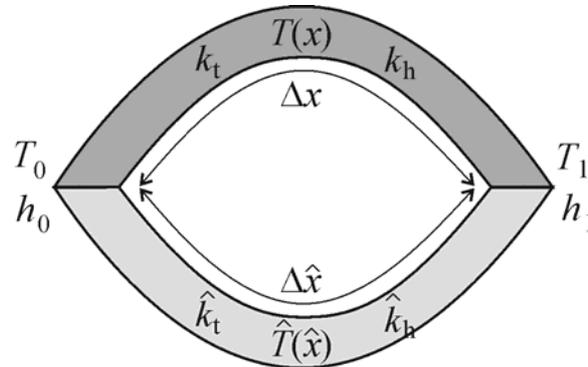


Abb. 3.2: Aus zwei eindimensionalen Modellen zusammengesetztes Kreislaufsystem für die stationäre 1-Phasen-Strömung.

Die thermoosmotischen und hydraulischen Durchlässigkeiten seien innerhalb der eindimensionalen Teilsysteme konstant, zwischen den Teilsystemen jedoch variabel. Durch die Aneinanderschaltung herrschen an den zusammen liegenden Enden der Teilsysteme die gleichen hydraulischen Potentiale h_0 und h_1 und Temperaturen T_0 und T_1 . Dem System wird erlaubt, die Potenzialdifferenz $h_1 - h_0$ als Reaktion auf den thermoosmotischen Fluss zu verändern.

Die Flussdichte im ersten Fließsystem sei gemäß Gleichung (3.5) durch

$$J_g = -k_h \cdot \frac{h_1 - h_0}{\Delta x} - k_t \cdot \frac{T_1 - T_0}{\Delta x} \quad (3.8)$$

beschrieben, die im zweiten durch

$$\hat{J}_g = -\hat{k}_h \cdot \frac{h_1 - h_0}{\Delta \hat{x}} - \hat{k}_t \cdot \frac{T_1 - T_0}{\Delta \hat{x}}, \quad (3.9)$$

wobei Δx und $\Delta \hat{x}$ die Längen der beiden eindimensionalen Fließsysteme bezeichnen. Durch die Zusammenschaltung beider Systeme zu einem geschlossenen Kreislauf gilt

$$J_g + \hat{J}_g = 0. \quad (3.10)$$

Aus den Gleichungen (3.8) – (3.10) ergibt sich für die Gesamtflussdichte im ersten Teilsystem

$$J_g = \frac{k_h \hat{k}_t - \hat{k}_h k_t}{k_h \frac{\Delta \hat{x}}{\Delta x} + \hat{k}_h} \cdot \frac{T_1 - T_0}{\Delta x}. \quad (3.11)$$

Damit tritt beim Anlegen eines Temperaturgradienten genau dann eine Zirkulationsströmung ($J_g \neq 0$) auf, wenn

$$k_h \hat{k}_t \neq \hat{k}_h k_t.$$

Zirkulationsströmungen können demnach auftreten, wenn die Teilsysteme unterschiedliche thermoosmotische oder hydraulische Durchlässigkeiten besitzen; bei gleichen Durchlässigkeitswerten werden sie dagegen verhindert.

Es lässt sich einfach zeigen, dass dies nicht auf den eindimensionalen Fall beschränkt ist: Zirkulationsströmungen werden unterbunden, wenn das Vektorfeld der Flussdichte $J_{ges} = J_t + J_h$ wirbelfrei ist, d.h. wenn $\text{rot } J_{ges} = 0$. Sind k_t und k_h räumlich konstant, so ist $J_{ges} = -k_h \text{grad } h - k_t \text{grad } T = \text{grad } (-k_h h - k_t T)$ der Gradient eines Potenzialfeldes, womit $\text{rot } J_{ges} = 0$ erfüllt ist.

3.4 Interpretation früherer Arbeiten

Die Wirkung advektiver Kompensationsflüsse unter stationären, gesättigten Bedingungen wurde von Oliver /OLI 86/ und Soler /SOL 99, SOL 01/ untersucht. Oliver betrachtete mit einem analytischen Modell die Wirkung der Thermoosmose in der Nähe eines sphärischen wärmeproduzierenden Abfallbehälters in einem unendlich ausgedehnten homogenen porösen Medium. Soler berechnete numerisch die thermoosmotische Wirkung einer Wärmequelle in einem rechteckigen Modellgebiet, das von hydraulischen Festpotenzialen umrandet wird, in zwei und drei Raumdimensionen.

Die Rechnungen beider Autoren ergaben, dass die durch die Wärmequelle erzeugten thermoosmotischen Flüsse wegen der Massenerhaltungsbedingung vollständig durch hydraulische Flüsse kompensiert wurden. Sie zogen hieraus den Schluss, dass Wärmequellen, die sich innerhalb eines durchflossenen (und quellenfreien) Gebietes

befänden, keine thermoosmotische Transportwirkung entfalten würden (trotz potenziell hoher thermoosmotischer Flusssichten).

Angesichts der oben angestellten Überlegungen für eindimensionale Systeme müssen die Rechenergebnisse von Oliver und Soler vorsichtiger bewertet werden. Einerseits werden in den Modellen beider Autoren lediglich homogene hydraulische und thermoosmotische Durchlässigkeiten betrachtet, womit Zirkulationsströmungen unterdrückt werden. Andererseits beeinflussen die Wärmequellen in den Modellen von Oliver und Soler nur das Temperaturfeld im Gebietsinnern und üben keinen Einfluss auf die Randtemperaturen aus: so schreibt etwa Soler in seinem Modell konstante Temperaturen an den Gebietsrändern vor, während Oliver konstante Temperaturen in unendlicher Entfernung von der Wärmequelle annimmt. Die von den Wärmequellen erzeugten thermoosmotischen Flüsse werden aufgrund dieser Annahmen hydraulisch vollständig kompensiert und erhöhen den Durchfluss durch das Gebiet nicht.

3.5 Fazit

Es lässt sich festhalten, dass auch im stationären Fall das Auftreten advektiver Kompensationsflüsse nicht ausreicht, um eine Transportwirkung der Thermoosmose auszuschließen. Eine Wärmequelle, die sich in einem quellenfreien Gebiet befindet, kann unkompensierte Zirkulationsströmungen auslösen, wenn ein inhomogenes Temperaturfeld und inhomogene thermoosmotische oder hydraulische Durchlässigkeiten vorliegen. Sie kann ferner eine unkompensierte Durchströmung induzieren, wenn sie Temperaturdifferenzen zwischen randlichen Fluidquellen bzw. -senken erzeugt.

4 Möglichkeiten eines thermoosmotischen Transports in einem Endlager

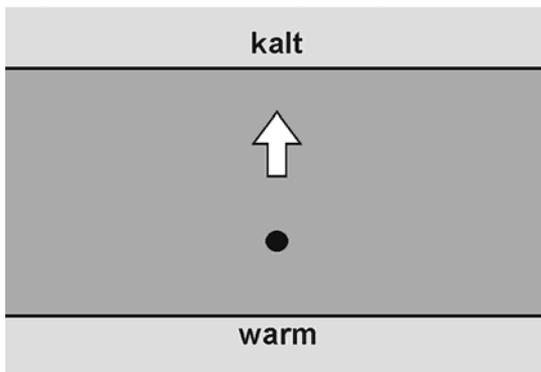
Anhand der oben vorgestellten Überlegungen zu eindimensionalen Systemen sollen im Folgenden Möglichkeiten eines thermoosmotischen Transportes in einem Endlager-system aufgezeigt werden. Im Rahmen dieser ersten qualitativen Abschätzung wird wie zuvor vereinfachend von stationären, gesättigten Verhältnissen ausgegangen.

4.1 Aquifere als Fluidquellen und -senken

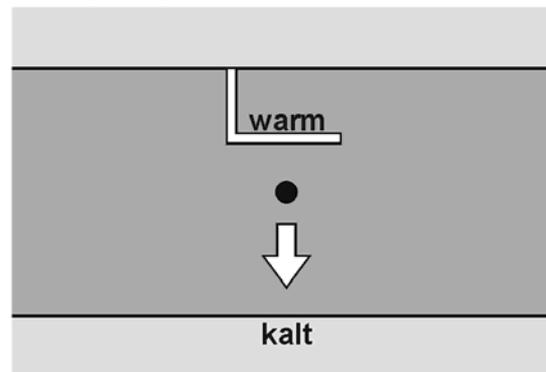
In einem Endlagersystem mit niedrigpermeablen Wirtsgesteinen stellen Aquifere Fluidquellen bzw. -senken mit näherungsweise festem hydraulischem Potenzial dar. Nach den in Abschnitt 3.2 angestellten Überlegungen führen Temperaturdifferenzen zwischen Fluidquellen zu unkompensierten thermoosmotischen Flüssen.

Wird eine Tonschicht, wie in Abb. 4.1 dargestellt, von zwei Aquiferen umschlossen und wird durch wärmeproduzierende Abfälle eine Temperaturdifferenz zwischen beiden Aquiferen erzeugt, so kann es zu einer thermoosmotischen Durchströmung der Tonschicht kommen. Eine Temperaturdifferenz kann z.B. durch eine asymmetrische Einlagerung der Abfälle in der Tonformation erzeugt werden (Abb. 4.1 A) oder durch eine Verlagerung der Festpotenzialränder durch Grubenhohlräume, Auflockerungszonen oder tektonische Störungen, die mit einem Aquifer in Verbindung stehen (Abb. 4.1 B). Da die Temperatur entlang der Grenzen zwischen Aquiferen und Tonschicht mit zunehmender Entfernung zur Wärmequelle abfällt, ist außerdem mit einer Durchströmung des Tones entlang dieser Grenzen zu rechnen (Abb. 4.1 C). Es ist anzunehmen, dass die Stärke der Durchströmung mit wachsender Nähe zur Aquifer/Ton-Grenze und mit wachsendem Temperaturgefälle zunimmt.

A. Durchströmung aufgrund asymmetrischer Einlagerung



B. Durchströmung aufgrund einer Verlagerung von Festpotenzialrändern



C. Durchströmung in Randnähe

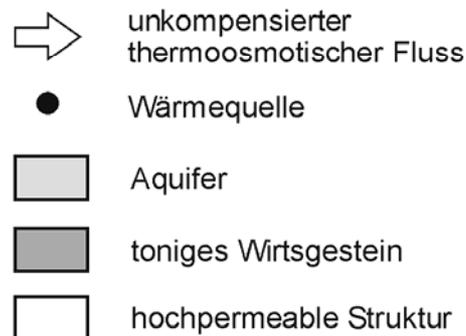
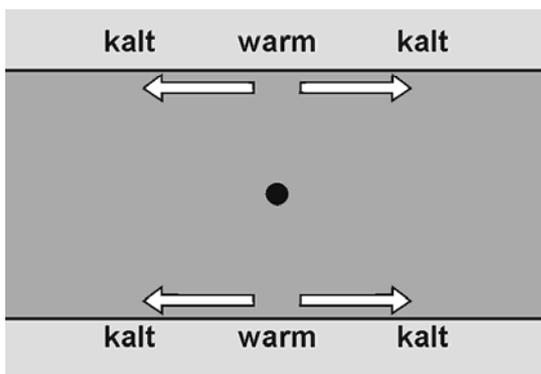


Abb. 4.1: Unkompensierte thermoosmotische Flüsse in einer von Aquiferen umgebenen Tonschicht. – Die Aquifere fungieren als Fluidquellen bzw. -senken mit festem hydraulischen Potenzial. Temperaturdifferenzen zwischen Festpotenzialrändern führen zu unkompensierten thermoosmotischen Flüssen.

4.2 Inhomogene hydraulische Durchlässigkeiten

In einem Endlagersystem erzeugen Materialwechsel oder Makroporen, wie etwa Risse, Brüche oder Fugen, inhomogene hydraulische Durchlässigkeiten, die zu Zirkulationsströmungen führen können. Es ist anzunehmen, dass die Skala der Zirkulationsströmung von der Größe der Diskontinuität abhängt. Großräumige Flüsse können dann durch bergbaulich bedingte Auflockerungszonen mit weitreichender Konnektivität, höherpermeable sedimentäre Zwischenschichten, tektonische Störungen oder Kombinationen dieser Elemente erzeugt werden. Hingegen dürften Auflockerungsbereiche mit begrenzter Ausdehnung, technisch bedingte Fugen, einzelne Klüfte oder Risse kleinräumigere Flüsse erzeugen. Liegen die Zirkulationsströmungen unterhalb

der Skala, auf der das Gestein als homogen betrachtet wird, so dürften die Zirkulationsströmungen zu einer Erhöhung der makroskopischen Dispersion führen.

4.2.1 Ausgedehnte permeable Strukturen

Wie nachfolgend erläutert wird, können sich ausgedehnte Strukturen, deren Permeabilität gegenüber der Umgebung erhöht ist (im Folgenden „permeable Strukturen“ genannt), wie Fluidquellen bzw. -senken verhalten.

Betrachtet wird ein Endlagersystem in einer horizontalen Tonschicht, in der sich eine permeable Struktur befindet, deren horizontale Ausdehnung groß gegenüber der (vertikalen) Mächtigkeit der Tonschicht ist (Abb. 4.2). Es wird angenommen, dass die Wärmequelle sich nahe dieser Struktur befindet und dort eine gegenüber den Aquifer/Ton-Grenzen erhöhte Temperatur erzeugt. Diese Temperaturdifferenz induziert einen thermoosmotischen Strom von der hochpermeablen Struktur in Richtung der Aquifere. Aufgrund der thermoosmotischen Fluidentnahme aus der Struktur sinkt in dieser das hydraulische Potenzial. Dem wird teilweise durch das Einsetzen eines zur Struktur gerichteten advektiven Flusses innerhalb des Tons entgegengewirkt (Kompensationsfluss). Der andere Teil der Fluidentnahme aus der permeablen Struktur wird durch Flüsse gedeckt, die auch in weiterer Entfernung von der Wärmequelle aus dem Aquifer zur hochpermeablen Struktur, und dann durch diese hindurch zur Wärmequelle strömen. Wegen der großen räumlichen Erstreckung der Struktur sind nur kleine Flusssichten aus dem Aquifer erforderlich um die thermoosmotische Fluidentnahme zu decken. Dies verhindert einen starken Abfall des hydraulischen Potenzials in der Struktur gegenüber dem Potenzial im Aquifer. Da also die permeable Struktur auf eine Fluidentnahme nur mit einem geringen Abfall des hydraulischen Potenzials reagiert, verhält sie sich wie eine Fluidquelle mit innerem Strömungswiderstand (vergl. Abschnitt 3.2). Dies kann einen unkompensierten thermoosmotischen Fluss zu einer anderen Fluidquelle bzw. -Senke ermöglichen.

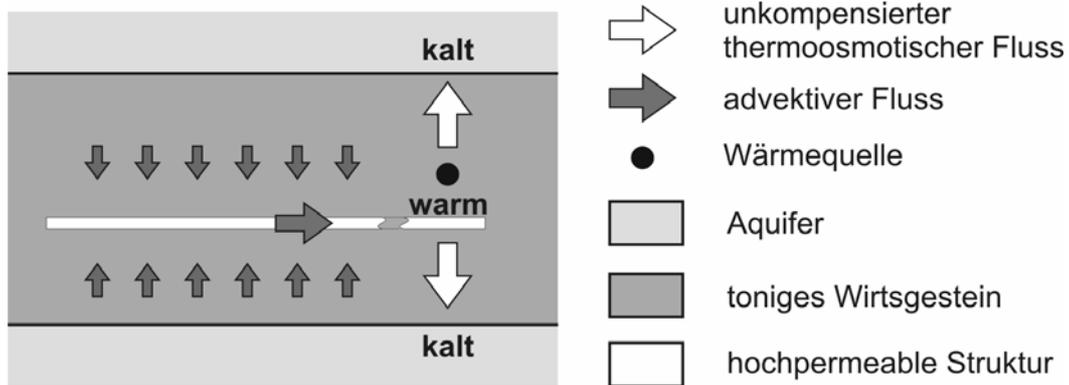


Abb. 4.2: Bildung einer Fluidquelle mit innerem Strömungswiderstand durch eine ausgedehnte hochpermeable Struktur. Temperaturunterschiede zwischen der Fluidquelle und den Aquiferen erzeugen unkompenzierte thermoosmotische Flüsse.

4.2.2 Kleinräumige permeable Strukturen

In einem Endlagersystem treten viele hydraulische Diskontinuitäten auf, deren Ausdehnung klein gegenüber der Mächtigkeit der Tonschicht ist. In diese Kategorie fallen alle permeablen Strukturen im Nahfeld eines Endlagers, wie z.B. natürliche und bergbaulich bedingte Brüche oder Fugen zwischen dem Wirtsgestein und einem Abdichtungs- oder Versatzmaterial. Die Transportwirkung solcher Strukturen kann mit Hilfe der Überlegungen aus Abschnitt 3.3 qualitativ abgeschätzt werden.

Zunächst wird eine ebene permeable Struktur betrachtet, entlang derer aufgrund ihrer Orientierung zu einer Wärmequelle die Temperatur variiert (Abb. 4.3). Es wird angenommen, dass die Wärmeleitfähigkeit der Struktur klein genug ist, um signifikante Temperaturdifferenzen aufrecht zu erhalten. Stark vereinfacht kann die Struktur durch das quasi-zweidimensionale Kreislaufsystem aus Abschnitt 3.3 dargestellt werden, wobei das eine Teilsystem die permeable Struktur darstellt und das andere den durchströmten Tonbereich. Es wird erwartet, dass innerhalb des Tons ein Fluss von Warm nach Kalt und innerhalb der permeablen Struktur ein Fluss von Kalt nach Warm stattfindet. Die Ausdehnung der Struktur dürfte die Skala der Zirkulationsströmung bestimmen. Die Stärke der Zirkulationsströmung sollte entsprechend dem Kreislaufmodell mit zunehmender Permeabilität der Struktur ansteigen.

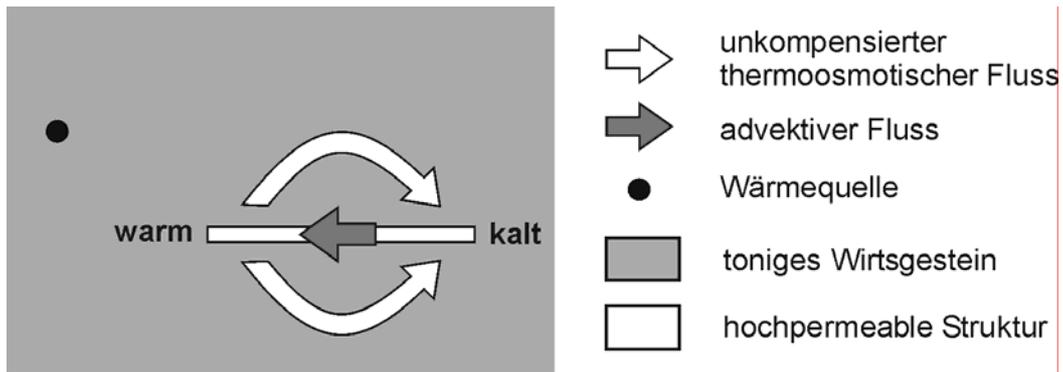


Abb. 4.3: Unkompenzierte thermoosmotische Zirkulationsströmung an einer hochpermeablen Struktur.

Auch in Versatzkammern, die von Auflockerungszonen umgeben sind, sind unkompenzierte thermoosmotische Flüsse zu erwarten (Abb. 4.4). Für die meisten Kammergeometrien dürfte die Auflockerungszone nicht an jeder Stelle die gleiche Temperatur aufweisen, vorausgesetzt, dass die Wärmeleitfähigkeit der Auflockerungszone klein genug ist, um die Temperaturunterschiede aufrecht zu erhalten. In einer vertikalen Einlagerungskammer sollte daher ein Fluss von den Flanken zu den Ecken der Kammer stattfinden (Abb. 4.4 A). Auch bei Einlagerung mehrerer wärme-producinger Abfallbehälter in einer horizontalen Einlagerungskammer sind Zirkulationsströmungen möglich. Abb. 4.4 B zeigt das zu erwartende Strömungsbild.

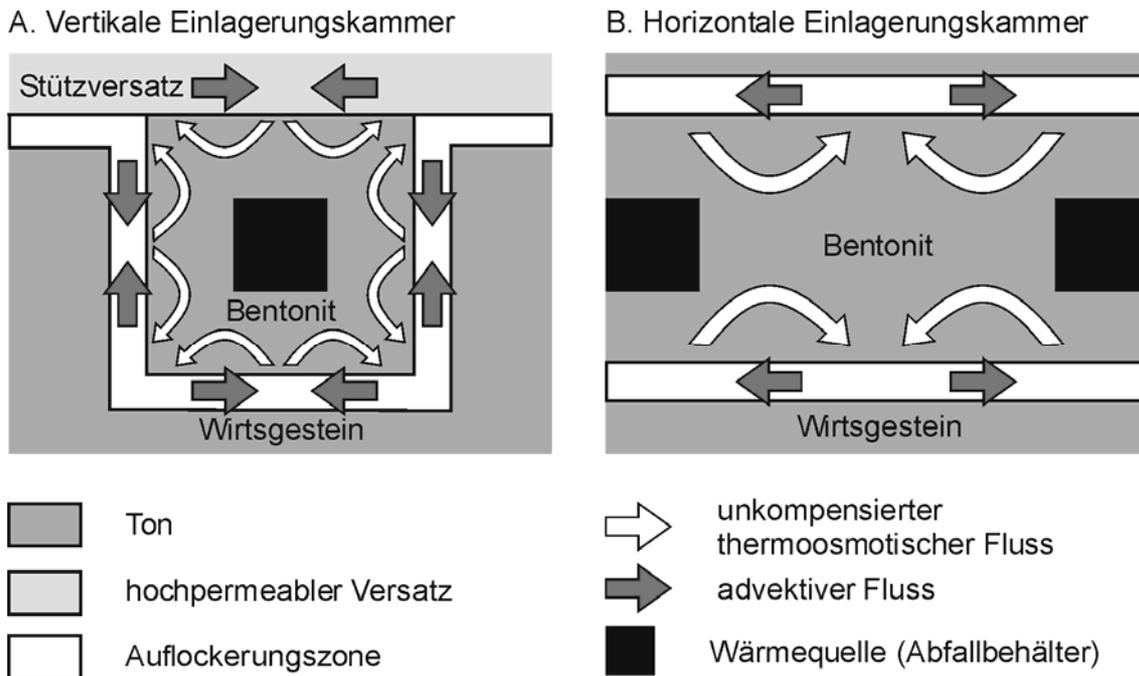


Abb. 4.4: Unkompensierte thermoosmotische Flüsse in einer vertikalen und einer horizontalen Versatzkammer. – Zu beachten ist, dass die Flüsse von den Temperaturen der Auflockerungszone und somit von ihrer Lage relativ zur Wärmequelle abhängen. Der thermoosmotische Transport ist demnach von der Kammergeometrie abhängig.

4.3 Fazit

Fluidquellen bzw. –Senken und inhomogene hydraulische Durchlässigkeiten, die zu unkompensierten thermoosmotischen Flüssen führen können, sind in Endlager-systemen u.a. in Form von Aquiferen und höherpermeablen Zonen (Risse, Brüche, Fugen, Auflockerungszonen, Wechsel technischer Materialien, sedimentäre Zwischenschichten, tektonische Störungen) vorhanden. Für das Auftreten unkompensierter thermoosmotischer Flüsse ist eine geeignete räumliche Anordnung möglicher Fluidquellen bzw. –Senken und hydraulischer Diskontinuitäten relativ zur Wärmequelle von Bedeutung. Die vorgestellten Beispiele zeigen, dass sowohl im Fern- als auch im Nahfeld eines Endlagers solche Anordnungen zu erwarten sind. Das Auftreten transportwirksamer thermoosmotischer Flüsse in einem Endlagersystem ist daher nicht auszuschließen.

5 Numerisches Modell

5.1 Modellbeschreibung

Zur Abschätzung der Transportwirkung der Thermoosmose in gesättigten Tonen oder Tonsteinen wird ein stationäres zweidimensionales thermoosmotisch-advectives Strömungsfeld numerisch untersucht (siehe auch Modellbeschreibung in Anhang A). Um zu entscheiden, ob die betrachteten Systeme diffusions- oder advektionsdominiert sind, wird der advektiv-diffusive Transport von Partikeln durch Particle-Tracking unter Anwendung des Random-Walk-Verfahrens simuliert. Auf eine Anwendung von Peclet-Zahlen zur Beschreibung der Diffusionsdominanz eines Systems wird verzichtet. Da die thermoosmotisch induzierten Strömungsfelder räumlich inhomogen sind, hängt der advective Transport stark davon ab, welche Bereiche des Strömungsfeldes durch Diffusion erreicht werden können. Diffusiver und advectiver Transport sollen deshalb als gekoppelter Prozess betrachtet werden, was mit Peclet-Zahlen nicht zu erreichen ist.

Lösung der Strömungsdifferenzialgleichung

Die zugrunde liegende Differenzialgleichung für die Strömung,

$$\operatorname{div}(-k_t \cdot \nabla T - k_h \cdot \nabla h) = 0,$$

die sich aus den Gleichungen (3.1), (3.2) und (3.3) ergibt, wurde nach der Bilanzmethode (control volume method) diskretisiert und mit Hilfe des Gauß-Seidel-Verfahrens mit sukzessiver Überrelaxation gelöst. Zur Diskretisierung und Lösung des Gleichungssystems wurden keine bestehenden Programme oder Programmbibliotheken genutzt. Die Strömungsdifferenzialgleichung wird numerisch auf einem zweidimensionalen, blockzentrierten rechteckigen Gitter mit 100 x 100 rechteckigen Elementen gelöst. Das Gebiet wird entweder durch Festpotenzial-Elemente oder undurchlässige Elemente begrenzt. Um nur thermoosmotische Flüsse und die hydraulische Reaktion zu untersuchen, wird von einer konstanten Hintergrundtemperatur ausgegangen und alle Festpotenzialränder werden auf ein hydraulisches Potenzial von 0 gesetzt. Damit fände ohne Wärmequelle kein advectiver oder thermoosmotischer Fluss statt.

Als zweidimensionales Temperaturfeld wird ein zweidimensionaler Schnitt durch ein stationäres dreidimensionales Temperaturfeld vorgegeben, wie es durch Wärmeleitung in der Umgebung einer sphärischen Wärmequelle erzeugt wird:

$$T(r) = \frac{Q}{4\pi \lambda r} \quad (5.1)$$

Dabei ist Q die Wärmeproduktionsrate in W, λ die Wärmeleitfähigkeit in $\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$ und r der Abstand von der Wärmequelle in m. Der Abstand r eines Punktes (x, y) von einer Wärmequelle, die sich an der Position (x_0, y_0) befindet, ist

$$r(x, y) = \sqrt{(x - x_0)^2 + (y - y_0)^2}$$

Die Annahme eines zeitunabhängigen Temperaturfeldes würde eine starke Einschränkung des Modells für die Berechnung von Endlagerszenarien bedeuten, da das Abklingen der Wärmeproduktionsrate die Wirkung der Thermoosmose zeitlich begrenzt. Um diesen Effekt zu berücksichtigen, wird die Wärmeproduktionsrate Q während des Partikeltransportes als zeitabhängige Größe $Q(t) := Q_0 \cdot \varphi(t)$ beschrieben, wobei Q_0 die initiale Wärmeproduktionsrate und $\varphi(t)$ eine Abklingfunktion ist. Um weiterhin die Vereinfachung einer stationären Massenbilanzgleichung (3.3) nutzen zu können, wird angenommen, dass sich die zeitliche Änderung der Wärmeproduktionsrate ohne Verzögerung auf das Temperatur- und Strömungsfeld auswirkt. Physikalisch ist dies durch eine Wärmekapazität von 0 zu erreichen.

Mit den Gleichungen (2.1) und (5.1) erhält man für die thermoosmotische Flussdichte

$$J_t = -\frac{k_t Q_0}{4\pi \lambda} \varphi(t) \nabla \frac{1}{r(x, y)}, \quad (5.2)$$

d.h., dass die Flussdichte linear von $k_t Q_0 \lambda^{-1}$ abhängt. Dies erlaubt eine Reduktion der Modellparameter, indem die thermoosmotische Durchlässigkeit k_t mit dem Faktor $Q_0 \lambda^{-1}$ reskaliert wird. Damit vereinfacht sich Gleichung (5.2) zu

$$J_t = -\frac{k_t^*}{4\pi} \varphi(t) \nabla \frac{1}{r(x, y)}. \quad (5.2)$$

Der Parameter $k_t^* = k_t Q_0 \lambda^{-1}$ wird im Folgenden initiale reskalierte thermoosmotische Durchlässigkeit (IRTD) genannt.

Simulation des Partikeltransports

Vereinfachend wird von Partikeln ausgegangen, die weder zerfallen, noch retardiert werden. Jedes Partikel führt innerhalb eines Zeitschrittes Δt zunächst einen zufälligen Sprung

$$u'(t + \Delta t) = u(t) + G(\sigma)$$

aus (Random-Walk), wobei $u(t)$ die Partikelposition zum Zeitpunkt t ist, $u'(t + \Delta t)$ die Partikelposition nach dem Sprung und G ein Zufallsprozess mit gaußscher Normalverteilung und Standardabweichung

$$\sigma(\Delta t) = \sqrt{2D \Delta t},$$

die ihrerseits abhängig ist von der Diffusivität D und dem Zeitschritt Δt . Beim Diffusionsprozess wird von homogenen Diffusivitäten ausgegangen. Nach dem Random-Walk-Sprung wird das Partikel an der neuen Position advektiv transportiert:

$$u(t + \Delta t) = u'(t + \Delta t) + J \Delta t.$$

Beim advektiven und thermoosmotischen Partikeltransport wird vereinfachend davon ausgegangen, dass die mittlere Abstandsgeschwindigkeit der Partikel gleich der Filtrationsgeschwindigkeit des Fluids J ist (entspricht einer Porosität von 1). Durch diese Annahme wird der thermoosmotische Transport gegenüber dem diffusiven Transport unterschätzt. Hydrodynamische Dispersion bleibt unberücksichtigt. Der Zeitschritt Δt wird so gewählt, dass die Weglänge einer Partikelwanderung auf $\frac{1}{4}$ der Größe eines Gitterelementes beschränkt bleibt.

Modellparameter

Für die Lösung der Strömungsdifferentialgleichung sind aufgrund der Reskalierung nur noch drei Modellparameter erforderlich:

- Initiale reskalierte thermoosmotische Durchlässigkeit (IRTD)

$$k_t^* := \frac{k_t Q_0}{\lambda} \quad [\text{m}^3 \text{s}^{-1}]$$

- Hydraulische Durchlässigkeit k_h
- Abklingfunktion $\varphi(t)$ mit $\varphi(0) = 1$ (dimensionslos)

Der diffusive Partikeltransport wird durch einen einzigen Modellparameter kontrolliert:

- Diffusivität D [$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$]

Im Gebiet stellt sich das hydraulische Potenzial so ein, dass die Bilanzgleichung der Flüsse erfüllt wird. Eine Veränderung der hydraulischen Durchlässigkeit k_h führt zu einer Veränderung des hydraulischen Potenzials, nicht aber zu einer Veränderung der Kompensationsflüsse. Der absolute Wert der hydraulischen Durchlässigkeit ist deshalb für den hier interessierenden thermoosmotischen Gesamtfluss unerheblich. Im Modell werden die Werte für k_h so gewählt, dass die Stabilität des numerischen Lösungsverfahrens nicht gefährdet wird.

5.2 Wirkung von hochpermeablen Strukturen und Festpotenzialrändern

An zwei ausgewählten Beispielen soll im Folgenden die Wirkung von Fluidquellen und inhomogenen hydraulischen Durchlässigkeiten auf das Strömungsfeld betrachtet werden. Als hydraulische Diskontinuität wird im Fall A eine lineare hochpermeable Struktur betrachtet, die aufgrund ihrer Orientierung zur Wärmequelle ein wärmeres und ein kühleres Ende aufweist (vergl. Abb. 4.3 in Abschnitt 4.2.2). Im Fall B wird ein Gebietsrand mit festem hydraulischem Potenzial untersucht, an dem unterschiedliche Temperaturen herrschen (vergl. Abb. 4.1 C in Abschnitt 4.1).

5.2.1 Fall A: Strömung entlang einer hochpermeablen Struktur

Es wird ein quadratisches Modellgebiet betrachtet (1 m x 1 m), bei dem alle Ränder geschlossen sind. Um die Lösbarkeit des Gleichungssystems zu gewährleisten, wird in der Gebietsmitte eine Zelle mit festem hydraulischem Potenzial vorgegeben ($h = 0$ m). In der Mitte des Gebietes liegt eine 0,5 m lange horizontale Reihe von Elementen, deren hydraulische Durchlässigkeit um den Faktor 1000 gegenüber dem übrigen

Gebiet erhöht ist. Im ganzen Gebiet liegen konstante IRTD (initiale reskalierte thermoosmotische Durchlässigkeiten) vor ($k_t^* = 10^{-7} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$). Die Wärmequelle befindet sich auf der Höhe der hochpermeablen Struktur am Punkt (0 m; 0,5 m).

Abb. 5.1 zeigt die Richtungen der sich ergebenden Strömungsvektoren. An der hochpermeablen Struktur, an der die Temperatur von links nach rechts abfällt, bildet sich ein Zirkulationssystem aus (das Vektorfeld der Flussdichte ist aufgrund der inhomogenen hydraulischen Durchlässigkeiten nicht wirbelfrei).

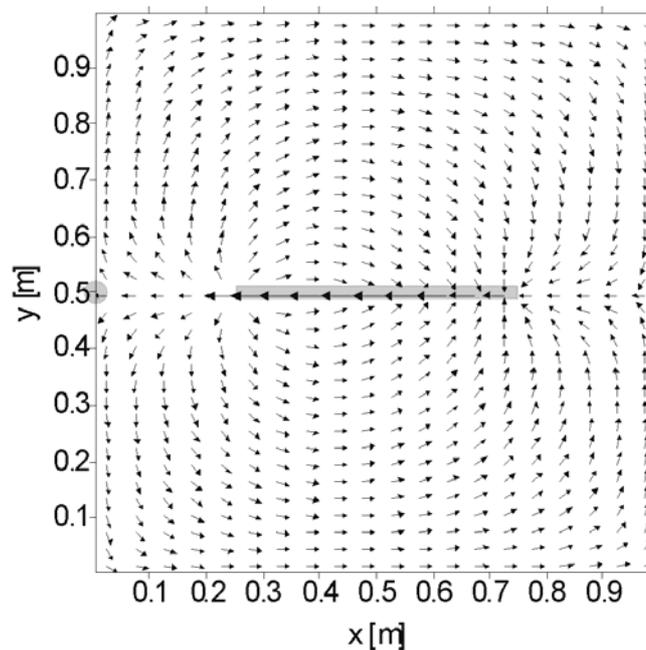


Abb. 5.1: Strömung entlang einer hochpermeablen Struktur. – Der Sitz der Wärmequelle ist durch den schattierten Kreis, der Sitz der hochpermeablen Struktur durch den schattierten Bereich in der Gebietsmitte gekennzeichnet. Die hydraulische Durchlässigkeit der Struktur ist um den Faktor 1000 gegenüber dem übrigen Gebiet erhöht. Alle Gebietsränder sind geschlossen. Festpotenzialzelle bei Koordinate (0,5 m; 0,5 m) mit $h = 0 \text{ m}$.

5.2.2 Fall B: Strömung entlang eines Festpotenzialrandes

Es wird ein quadratisches Modellgebiet betrachtet (1 m x 1 m), bei dem der untere Rand ein festes hydraulisches Potenzial von 0 m hat, während alle anderen Ränder geschlossen sind. Die Wärmequelle befindet sich in der linken unteren Ecke bei der Koordinate (0 m; 0 m). Das Strömungssystem wird zu einem festen Zeitpunkt

betrachtet, wobei im ganzen Gebiet konstante IRTD herrschen. Es wird $\varphi = 1$ und $k_t^* = 10^{-7} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ gesetzt, was jedoch keinen Einfluss auf die Richtung der Strömungsvektoren hat.

Abb. 5.2 zeigt die Richtungen der sich ergebenden Strömungsvektoren. Deutlich zu erkennen ist der Fluss von den linken, wärmeren Bereichen des Festpotenzialrandes zu den rechten, kühleren Bereichen (die Temperatur fällt am unteren Rand von links nach rechts mit $1/x$ ab). Das Strömungsfeld ist aufgrund der homogenen Durchlässigkeitswerte wirbelfrei. Interpretiert man jedoch den unteren Festpotenzialrand als Grenze zu einer hochpermeablen Struktur, in der wegen ihrer hohen Durchlässigkeit annähernd konstante hydraulische Potenziale herrschen, so kann das Modellgebiet als Teil einer Zirkulationsströmung aufgefasst werden. Der gedachte Rückfluss findet dann außerhalb des Modellgebietes, innerhalb der hochpermeablen Struktur statt.

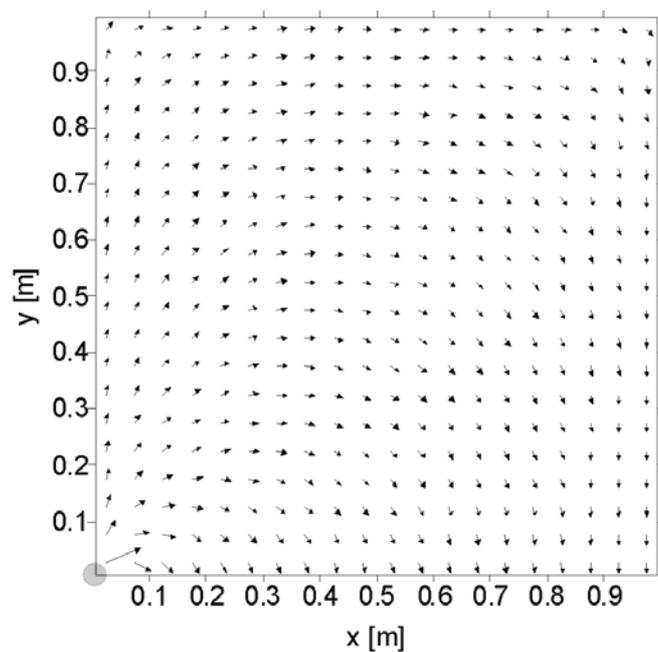


Abb. 5.2: Richtung der Strömungsvektoren entlang eines Festpotenzialrandes. – Der Sitz der Wärmequelle ist durch einen grau schattierten Kreis gekennzeichnet. Der untere Gebietsrand besitzt ein festes hydraulisches Potenzial ($h = 0 \text{ m}$), die übrigen Ränder sind geschlossen.

5.3 Thermoosmotische Flüsse in einem Endlager

5.3.1 Parameterwahl

Diffusivität

Als Diffusivitäten werden die effektiven Diffusivitäten der schwach sorbierenden Ionen Iodid und Tritium verwendet.

Messungen der Iodid-Diffusivität in kompaktiertem Na- und Ca-Bentonit bei Sättigungswassergehalten zwischen 20 % und 30 % ergaben Diffusivitäten zwischen $10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ und $10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ /KAH 85, MAD 91/. Diese beiden Werte werden der Simulation der Partikeldiffusion in Bentonit zugrunde gelegt.

Die Diffusivitäten im tonigen Wirtsgestein sind senkrecht zur Schichtung oft niedriger als parallel dazu. Da bei der nachfolgenden Simulation der Partikeldiffusion in einer horizontalen Tonschicht überwiegend der vertikale Austrag interessiert, werden hier die Diffusivitäten senkrecht zur Schichtung verwendet. Labormessungen für verschiedene tonige Wirtsgesteine ergeben Diffusivitäten für Tritium zwischen $10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ und $10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ /NAG 02a (Kap. 5.10.4)/. Die Modellrechnungen für das Wirtsgestein werden daher mit Diffusivitäten von $10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$, $10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ und $10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ durchgeführt.

Thermoosmotische Durchlässigkeit

Wegen der geringen Zahl experimenteller Daten für gesättigten Ton und Tonstein ist die thermoosmotische Durchlässigkeit der Modellparameter mit der größten Variabilität (4 Größenordnungen). Betrachtet wird ein Wertebereich zwischen $10^{-10} \text{ m}^2\text{K}^{-1}\text{s}^{-1}$ (Messungen an Kaolinit /SRI 75/) und $10^{-14} \text{ m}^2\text{K}^{-1}\text{s}^{-1}$ (Messungen an Bentonit /DIR 69/).

Wärmeleitfähigkeit

In Anlehnung an Messungen am Opalinuston wird von einer Wärmeleitfähigkeit von $1,5 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ ausgegangen /NAG 02a/.

Initiale Wärmeproduktionsrate und Abklingzeit

Für die initiale Wärmeproduktionsrate Q_0 eines einzelnen Abfallbehälters und die Abklingfunktion $\varphi(t)$ werden die Daten für einen MOX/ UO_2 -Abfallbehälter aus dem schweizerischen Entsorgungsprogramm verwendet /JOH 02/ (Abb. 5.3). Die initiale Wärmeproduktionsrate beträgt hier 1500 W; eine Abschwächung um den Faktor 10 ist nach ca. 1000 Jahren zu verzeichnen, eine Abschwächung um den Faktor 100 nach ca. 25000 Jahren.

Für die Simulation auf der Endlager-Skala wird von einer Einlagerung mehrerer Abfallbehälter ausgegangen. Zur Vereinfachung wird angenommen, dass sich die Abfallbehälter näherungsweise an einem Punkt befinden. Die Gleichung (5.1) für das Temperaturfeld kann somit weiterverwendet werden. Werden m Behälter eingelagert, so beträgt die initiale Wärmeproduktionsrate $m \cdot 1500$ W. Es wird von $m = 1000$ Abfallbehältern ausgegangen.

Initiale reskalierte thermoosmotische Durchlässigkeit (IRTD)

Mit den oben genannten Werten und Wertebereichen für die Wärmeleitfähigkeit, die thermoosmotische Durchlässigkeit und die Wärmeproduktionsrate ergeben sich IRTD zwischen 10^{-11} m^3/s und 10^{-7} m^3/s für Bentonit und zwischen 10^{-8} m^3/s und 10^{-4} m^3/s für das Wirtsgestein.

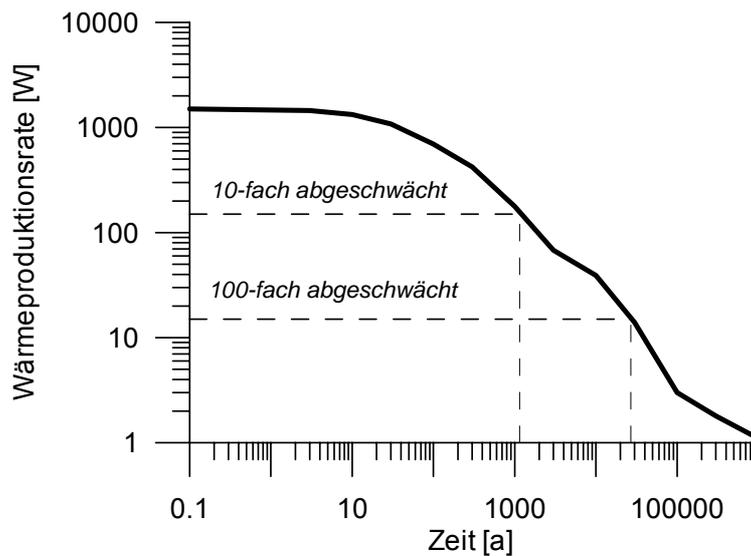


Abb. 5.3: Verlauf der Wärmeproduktionsrate für einen schweizerischen MOX/ UO_2 -Behälter /JOH 02/.

5.3.2 Fall 1: Endlager in einer Tonschicht

Das Modellgebiet beschreibt eine 200 m mächtige Tonschicht, in deren Mitte eine Wärmequelle liegt, die das Endlager repräsentiert (Abb. 5.4). Die Tonschicht sei von zwei Aquiferen umschlossen, die durch hydraulische Festpotenzialränder oberhalb und unterhalb des Modellgebietes beschrieben werden. 1 m unterhalb der Wärmequelle befindet sich eine horizontale hochpermeable Schicht, deren hydraulische Durchlässigkeit gegenüber dem restlichen Gebiet um den Faktor 1000 erhöht ist. Diese Schicht stellt entweder eine permeable sedimentäre Zwischenschicht, eine bergbaulich bedingte Auflockerungszone oder eine Kombination dieser Elemente dar. Die Tonschicht wird über eine horizontale Erstreckung von 800 m betrachtet. Die linken und rechten Ränder des Modellgebietes werden als undurchlässig angenommen. Diese Randbedingung ist – wenn Tone bereits als durchlässig eingestuft werden – zwar geologisch nur schwer interpretierbar, sie wird jedoch hier gewählt, um die Wirkung einer von den Festpotenzialrändern isolierten hochpermeablen Struktur zu demonstrieren.

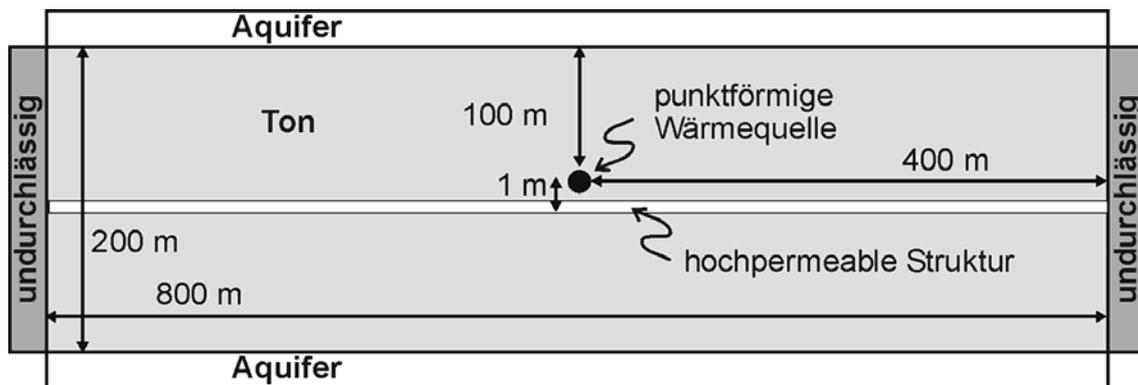


Abb. 5.4: Skizze des Modellgebietes für Fall 1: Von Aquiferen umschlossene Tonschicht mit zentraler hochpermeabler Struktur.

Die Strömungsvektoren der Gesamtflussdichte sind in Abb. 5.5 dargestellt. Deutlich sichtbar ist die Zirkulationsströmung, die durch die hochpermeable Zwischenschicht ausgelöst wird. Ein Teil des aus der Zwischenschicht strömenden Fluids erreicht die oberen und unteren Festpotenzialränder, der andere Teil strömt innerhalb des Modellgebietes wieder der Zwischenschicht zu. In größerer Entfernung von der Wärmequelle findet ein Fluss von den Festpotenzialrändern zu der Zwischenschicht statt.

Für $k_t^* = 10^{-7} \text{ m}^3/\text{s}$ beträgt die maximale Flussdichte im Gebiet 10^{-9} m/s , die Flussdichte an der (punktförmigen) Wärmequelle $1,7 \cdot 10^{-10} \text{ m/s}$ und an der Mitte des oberen Randes $2,8 \cdot 10^{-12} \text{ m/s}$. Die Flussdichte hängt linear von k_t^* ab.

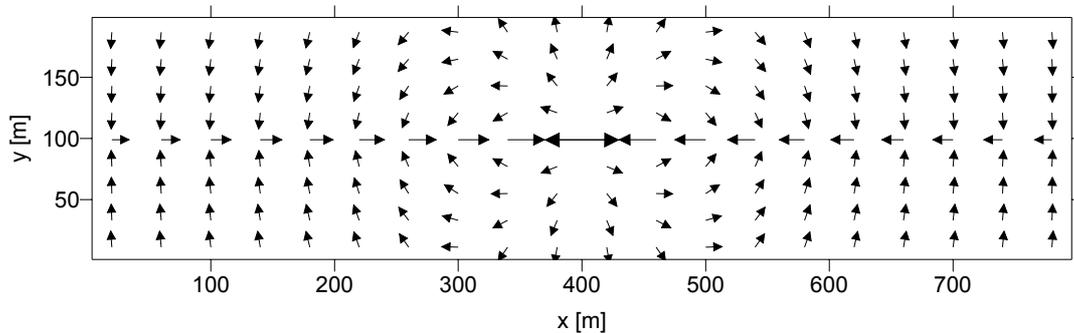


Abb. 5.5: Strömungsfeld in einer 200 m mächtigen Tonschicht. – Die y-Achse entspricht der Höhe über der Schichtbasis, die x-Achse der seitlichen Ausdehnung.

Für die Transportrechnungen wurden am Ort der Wärmequelle 10^6 Partikel platziert. Für die Entwicklung der Wärmeproduktionsrate $Q_0 \cdot \varphi(t)$ wurde die Charakteristik eines MOX/ UO_2 -Behälters nach Abb. 5.3 angenommen. Um die Wirkung des diffusiven und des advektiven Transportes zu vergleichen, werden die relativen Häufigkeiten der Partikel (Partikelzahl pro Gesamtpartikelzahl und Strecke) nach 10^6 Jahren in den Projektionen auf die vertikale Koordinatenachse sowie der zeitliche Verlauf des Partikeldurchbruchs durch einen der Festpotenzialränder (Durchbruchkurven) betrachtet. Den Rechnungen liegt die Annahme nicht-retardierter Partikel zugrunde.

Eine relativ zur Diffusion nennenswerte Transportwirkung der Thermoosmose findet noch im Rahmen der angenommenen Wertebereiche der Modellparameter statt. Dies lässt sich einerseits an den Partikelverteilungen nach 10^6 Jahren (obere Diagramme der Abb. 5.6 bis Abb. 5.8) und andererseits an den Durchbruchkurven (untere Diagramme der Abb. 5.6 bis Abb. 5.8) für verschiedene IRTD k_t^* und Diffusivitäten D ablesen.

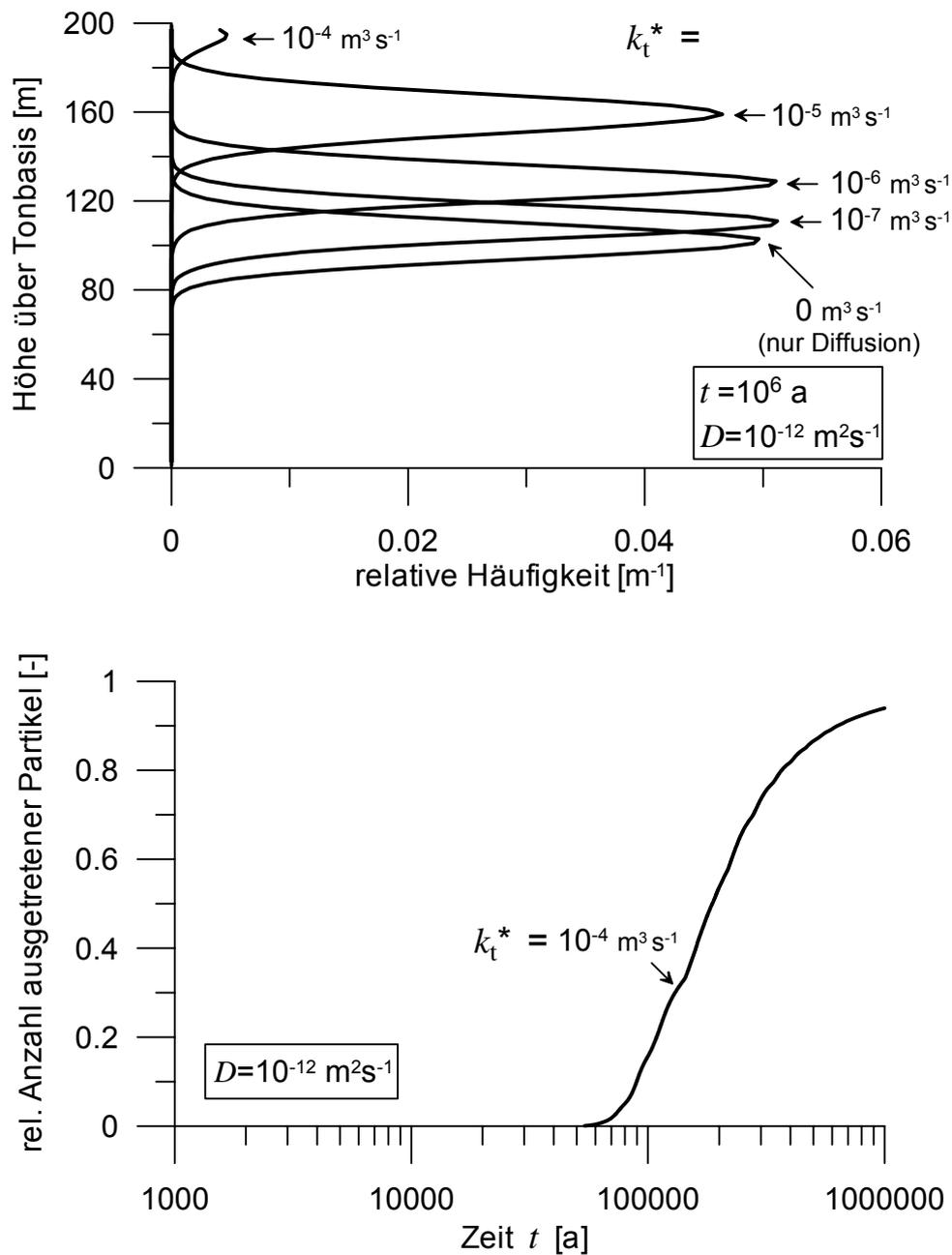


Abb. 5.6: Vertikale Verteilung der Partikel nach 10^6 Jahren (oben) und Durchbruchkurve (unten) für $D = 10^{-12} m^2/s$ und verschiedene initiale reskalierte thermoosmotische Durchlässigkeiten k_t^* (Für $k_t^* < 10^{-4} m^3 s^{-1}$ ist bei 10^6 Partikeln kein Durchbruch zu verzeichnen).

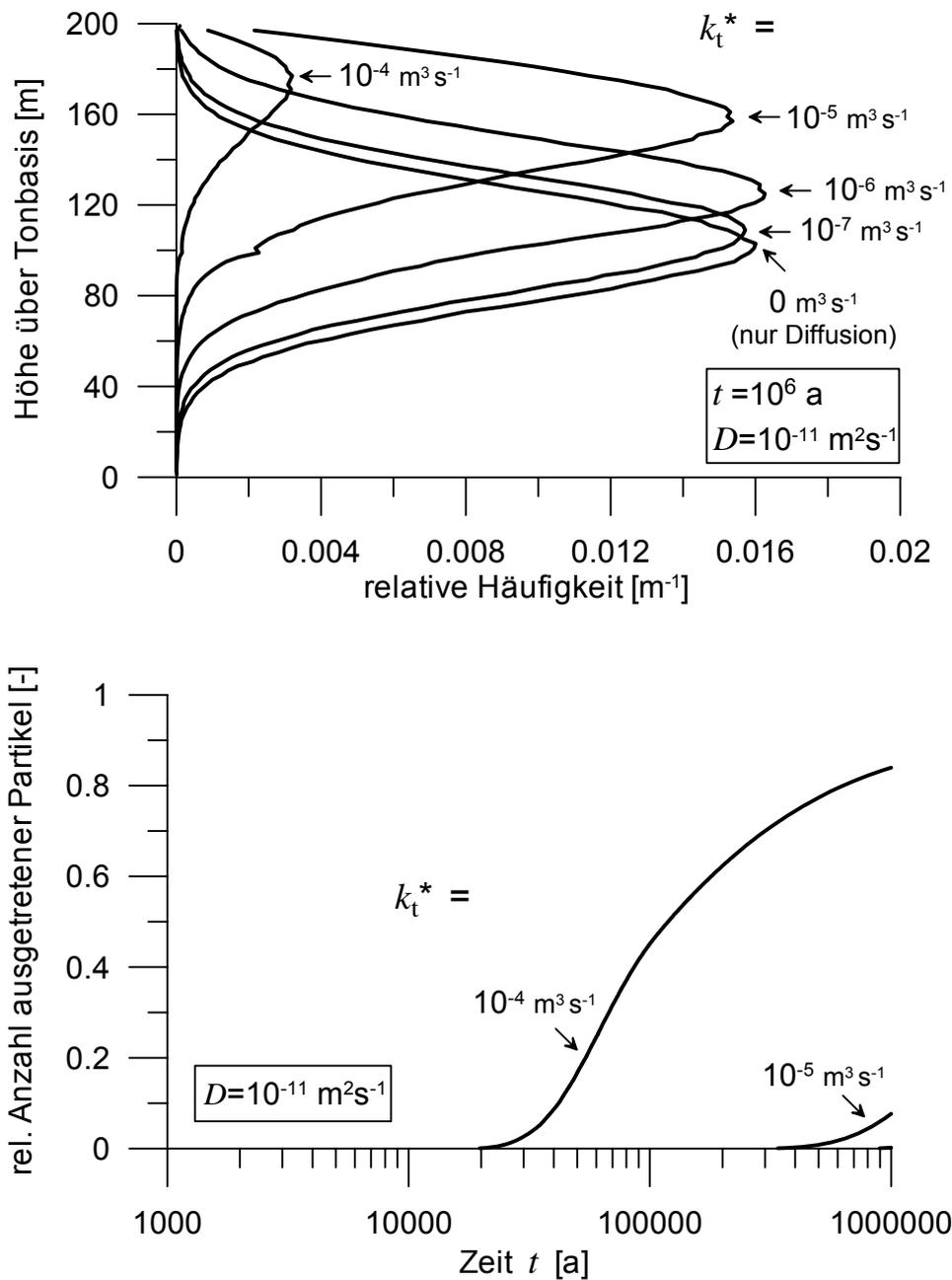


Abb. 5.7: Vertikale Verteilung der Partikel nach 10^6 Jahren (oben) und Durchbruchkurven (unten) für $D = 10^{-11} m^2/s$ und verschiedene initiale reskalierte thermoosmotische Durchlässigkeiten k_t^* .

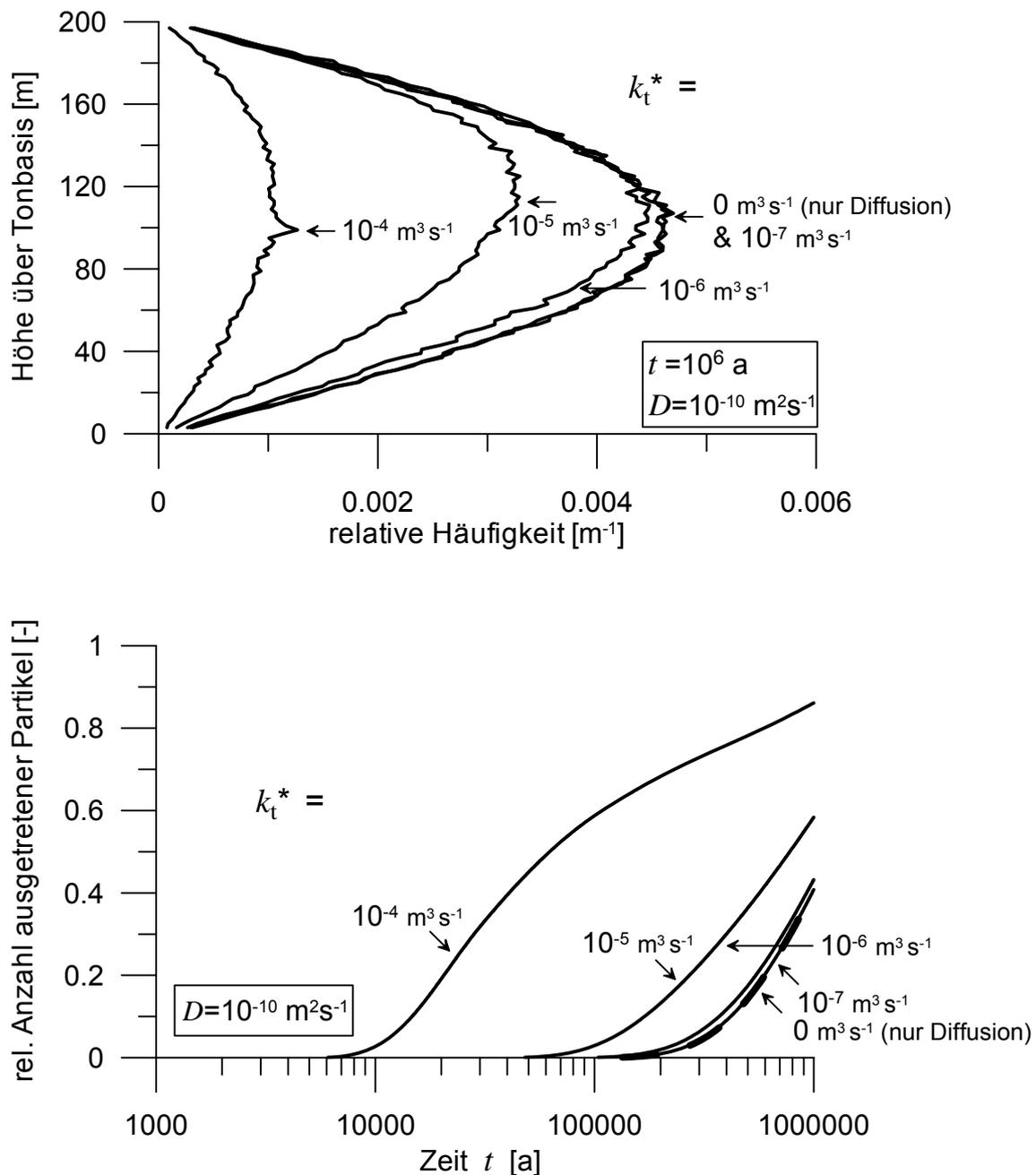


Abb. 5.8: Vertikale Verteilung der Partikel nach 10^6 Jahren (oben) und Durchbruchkurven (unten) für $D = 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ und verschiedene initiale reskalierte thermoosmotische Durchlässigkeiten k_t^* . – Die bei dieser Diffusivität geringere Kurvenglattheit der vertikalen Partikelverteilungen ist auf die geringere Menge der im System verbliebenen Partikel zurückzuführen.

Die vertikalen Partikelverteilungen zeigen mit zunehmender IRTD eine Wanderung der Konzentrationsmaxima zum oberen Modellrand. Für $D = 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ hat sich das Konzentrationsmaximum gegenüber dem rein diffusiven Fall um mehr als das

Zweifache der Standardabweichung des rein diffusiven Falles verschoben, wenn die IRTD größer gleich $10^{-6} \text{ m}^3/\text{s}$ ist. Für $D = 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ ist dies erst bei IRTD größer gleich $10^{-5} \text{ m}^3/\text{s}$ der Fall. Für die höchste Diffusivität ($D = 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$) zeichnet sich ein deutlicher Unterschied zum rein diffusiven Fall bei IRTD größer gleich $10^{-4} \text{ m}^3/\text{s}$ ab. Das Konzentrationsmaximum ist hier auf ca. 20 % abgefallen. Im Gegensatz zu den vertikalen Partikelverteilungen erlauben die Durchbruchkurven nur eine Bewertung des Partikeltransportes auf der Skala der halben Schichtmächtigkeit. Advective Partikelwanderungen, die innerhalb des betrachteten Zeitraums von 10^6 Jahren die Festpotenzialränder nicht erreichen, werden nicht berücksichtigt. Aus diesem Grund wird ein Partikelaustrag, der sich vom rein diffusiven Fall nennenswert unterscheidet, für alle Diffusivitäten erst bei IRTD größer gleich $10^{-4} \text{ m}^3/\text{s}$ sichtbar.

Abb. 5.9 zeigt für den Fall $D = 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ und $k_t^* = 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ die zeitliche Veränderung der Partikelverteilung. Bemerkenswert ist, dass etwa ein Drittel der innerhalb von einer Millionen Jahren ablaufenden Wanderung des Konzentrationsmaximums im Zeitraum 10.000 Jahre bis 1.000.000 Jahre stattfindet, obwohl die Temperaturgradienten nach 10.000 Jahren bereits auf 2,6 % des Ausgangswertes abgefallen sind. Damit wird deutlich, dass auch kleine Temperaturgradienten zu einem nennenswerten thermoosmotischen Transport führen können, sofern sie über lange Zeiträume wirken. Im Rahmen des vorgestellten Modells könnte also auch eine verzögerte Partikelfreisetzung aufgrund einer Abfallbehälter-Lebensdauer von einigen 1000 Jahren einen nennenswerten thermoosmotischen Transport nicht verhindern.

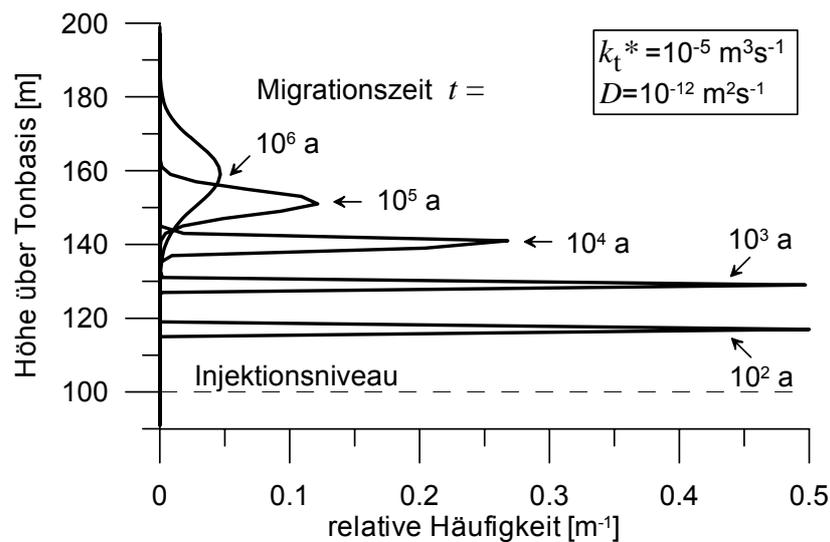


Abb. 5.9 Zeitliche Veränderung der vertikalen Partikelverteilung für $D = 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ und $k_t^* = 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$.

5.3.3 Fall 2: Quadratische Einlagerungskammer

Betrachtet wird ein vereinfachter vertikaler Schnitt durch eine vertikale Versatzkammer. Die Einlagerungskammer soll einen quadratischen Querschnitt besitzen und mit Bentonit verfüllt sein. Im Zentrum der Kammer befindet sich ein sphärischer Abfallbehälter (Abb. 5.10). Die Annahme einer sphärischen Behältergeometrie erlaubt die Verwendung eines Temperaturfeldes gemäß Gleichung (5.1). Die Seitenlänge der Kammer beträgt 2,5 m, der Durchmesser des Behälters 1 m. Diese Abmessungen orientieren sich an Behälter-Kammerwand-Abständen im schweizerischen Entsorgungskonzept für den Opalinuston /NAG 02b/. Zur Untersuchung thermoosmotisch induzierter Zirkulationsströmungen sei die Einlagerungskammer seitlich von einer hochpermeablen Zone umgeben. Da das hydraulische Potenzial in dieser Zone näherungsweise räumlich konstant ist, kann die Versatzkammer als Gebiet mit hydraulischen Festpotenzialrändern dargestellt werden. An den seitlichen Rändern und am unteren Rand der Kammer lässt sich die hochpermeable Zone als Auflockerungszone interpretieren. Der Einfachheit halber wird angenommen, dass die Kammer von oben durch einen hochpermeablen Stützversatz begrenzt wird. Die quadratische Geometrie der Einlagerungskammer ist ein wesentliches Merkmal dieses Rechenfalls. Bei einem kreisförmigen Kammerquerschnitt wären wegen der räumlich konstanten Temperaturverteilung an der Kammerwand keine thermoosmotischen Flüsse zu erwarten. Es wird vereinfachend angenommen, dass die hochpermeablen Zonen die gleiche Wärmeleitfähigkeit wie der Ton besitzen, so dass Temperaturunterschiede entlang der Zonen aufrechterhalten werden. Diese Annahme ist für die Verwendung des vereinfachten Temperaturfeldes nach Gleichung (5.1) erforderlich.

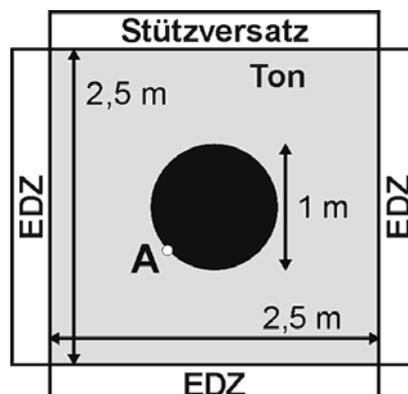


Abb. 5.10: Skizze des Modellgebietes für Fall 2: vertikaler Schnitt durch eine vertikale, von Auflockerungszonen umgebenen Versatzkammer. Der Punkt A kennzeichnet den Freisetzungspunkt der Partikel.

Abb. 5.11 zeigt das sich einstellende Strömungsfeld. Ein Fluss findet von den Flanken in die Ecken des quadratischen Gebietes statt, also von den Randbereichen mit hoher Temperatur zu denen mit niedriger Temperatur. Die maximale Flussdichte bei einer IRTD von $10^{-7} \text{ m}^3/\text{s}$ beträgt $2,6 \cdot 10^{-9} \text{ m/s}$. Das Strömungsfeld kann als Teil eines Zirkulationssystems interpretiert werden, wobei der gedachte Rückfluss in den hochpermeablen Zonen außerhalb des Modellgebietes stattfindet.

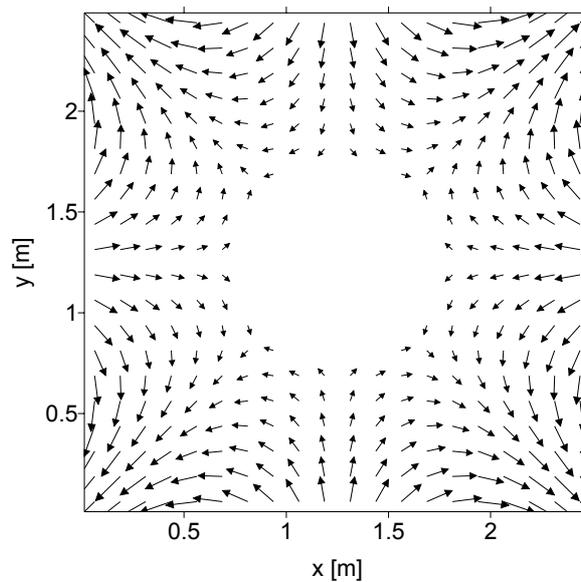


Abb. 5.11: Strömungsfeld in einer quadratischen Einlagerungskammer.

Der schnellste Partikelaustrag ist an dem in Abb. 5.10 dargestellten Freisetzungspunkt A zu erwarten. Hier werden für die Transportrechnungen 10^5 Partikel platziert. Da nach 10^6 Jahren bereits alle Partikel das System verlassen haben, wird zum Vergleich des diffusiven und advektiven Transports nur der zeitliche Verlauf des Partikeldurchbruchs an einem beliebigen Festpotenzialrand betrachtet.

Abb. 5.12 und Abb. 5.13 zeigt die Durchbruchkurven für verschiedene Diffusivitäten und IRTD. Eine nennenswerte Transportwirkung der Thermoosmose ist bei $D = 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ bei IRTD größer gleich $10^{-7} \text{ m}^3/\text{s}$ zu beobachten (Austritt von 50 % der Partikel: 110 a für $k_t^* = 10^{-7} \text{ m}^3/\text{s}$, 700 a für $k_t^* = 10^{-8} \text{ m}^3/\text{s}$ und 720 a für den diffusiven Fall). Für $D = 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ ist das System für alle betrachteten Werte der IRTD diffusionsdominiert (Austritt von 50 % der Partikel: 51 a für $k_t^* = 10^{-7} \text{ m}^3/\text{s}$ und 72 a für den diffusiven Fall). In Anbetracht der Ergebnisse für $D = 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ lässt sich festhalten, dass Thermoosmose auch in diesem Rechenfall im Rahmen der angenommenen Bandbreite der Parameterwerte ein transportwirksamer Mechanismus sein kann.

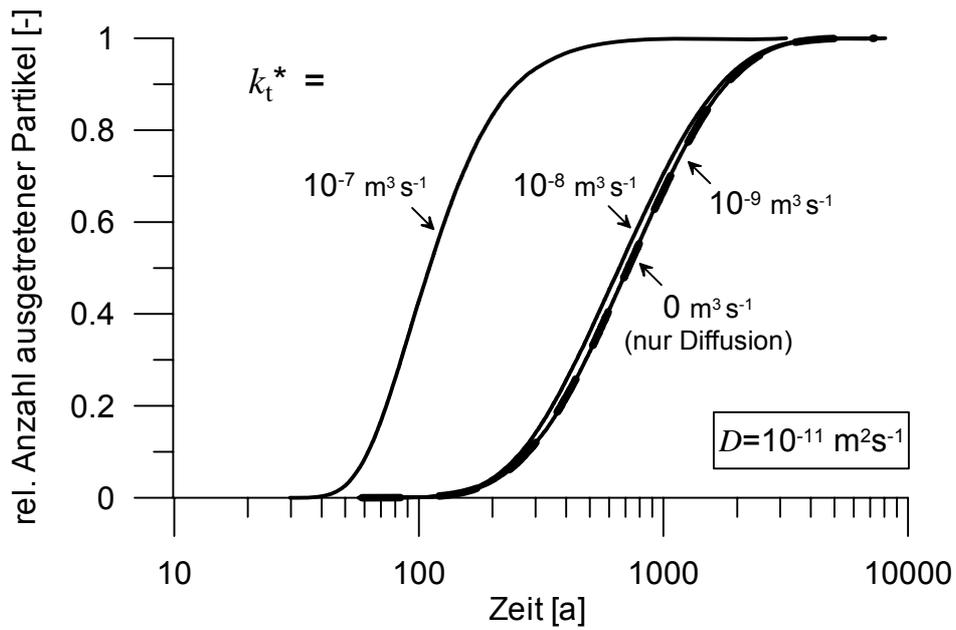


Abb. 5.12: Durchbruchkurven für $D = 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ und verschiedene Werte der initialen reskalierten thermoosmotischen Durchlässigkeit (IRT) k_t^* .

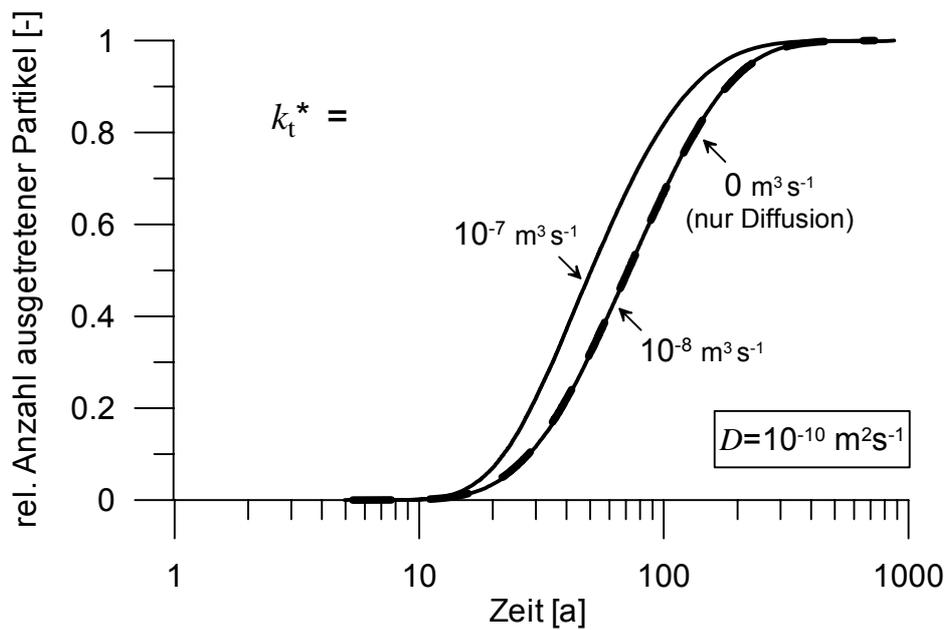


Abb. 5.13: Durchbruchkurven für $D = 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ und verschiedene Werte der initialen reskalierten thermoosmotischen Durchlässigkeit (IRT) k_t^* .

5.3.4 Fall 3: Langgestreckte Einlagerungskammer

Der Rechenfall 3 ergibt sich aus dem vorherigen durch eine Erhöhung der seitlichen Ausdehnung der Einlagerungskammer auf 10 m (Abb. 5.14).

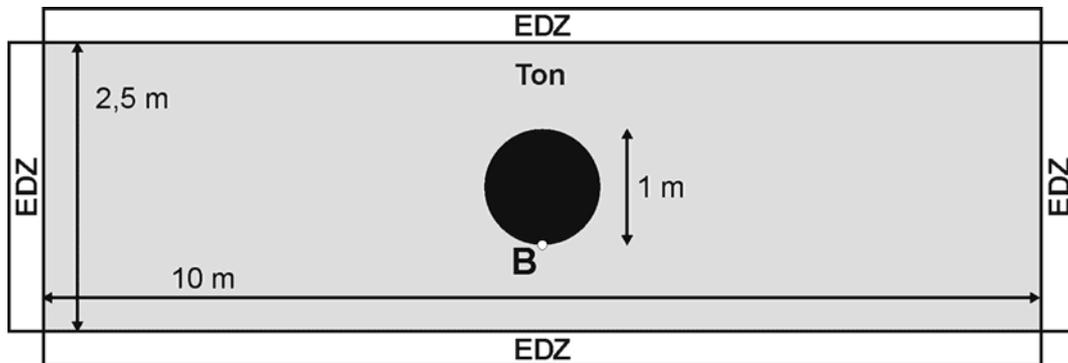


Abb. 5.14: Skizze des Modellgebietes für den Rechenfall 3: Variation des Falles 2 durch Verlängerung des Gebietes in horizontaler Richtung.

Abb. 5.15 zeigt das sich einstellende Strömungsfeld. Die Strömung ist überwiegend entlang der oberen und unteren Ränder ausgerichtet, weil die Temperaturgradienten hier größer sind als an den seitlichen Rändern. Die maximale Flussdichte bei einer IRTD von $10^{-7} \text{ m}^3/\text{s}$ beträgt $2,3 \cdot 10^{-9} \text{ m/s}$.

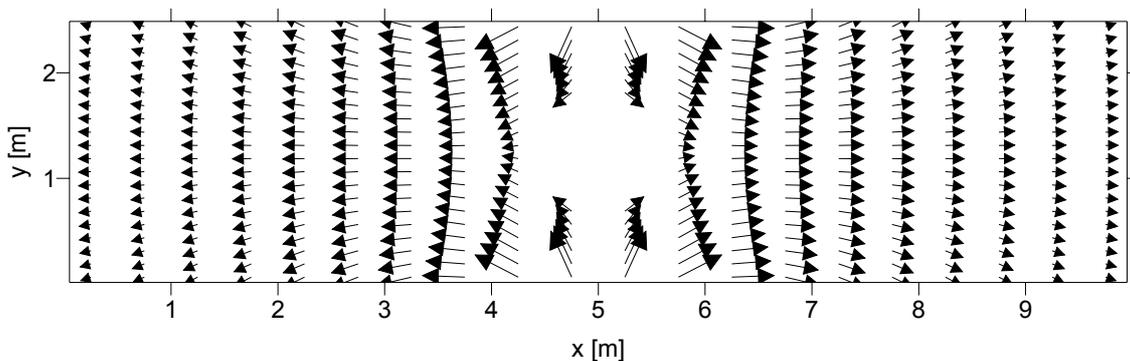


Abb. 5.15: Strömungsfeld in einer langgestreckten Einlagerungskammer.

Der für den rein diffusiven Transport eines Stoffes ungünstigste Freisetzungspunkt ist der in Abb. 5.14 gezeigte Punkt B, da hier die Abstände zu den Kammerwänden am geringsten sind. Das Strömungsfeld lässt vermuten, dass der thermoosmotisch induzierte advective Transport dem diffusiven Austrag entgegenwirkt, weil die Partikel

zunächst advektiv ins Gebietsinnere transportiert und wegen der großen lateralen Gebietsausdehnung nicht sofort wieder ausgetragen werden.

Die Durchbruchkurven in Abb. 5.16 bestätigen diesen Sachverhalt. Bei reiner Diffusion sind 50 % der Partikel nach 918 Jahren ausgetreten. Die größte Rückhalte-
wirkung ist für eine IRTD von $10^{-8} \text{ m}^3/\text{s}$ zu verzeichnen. In diesem Fall sind erst nach 1840 Jahren 50 % der Partikel ausgetreten.

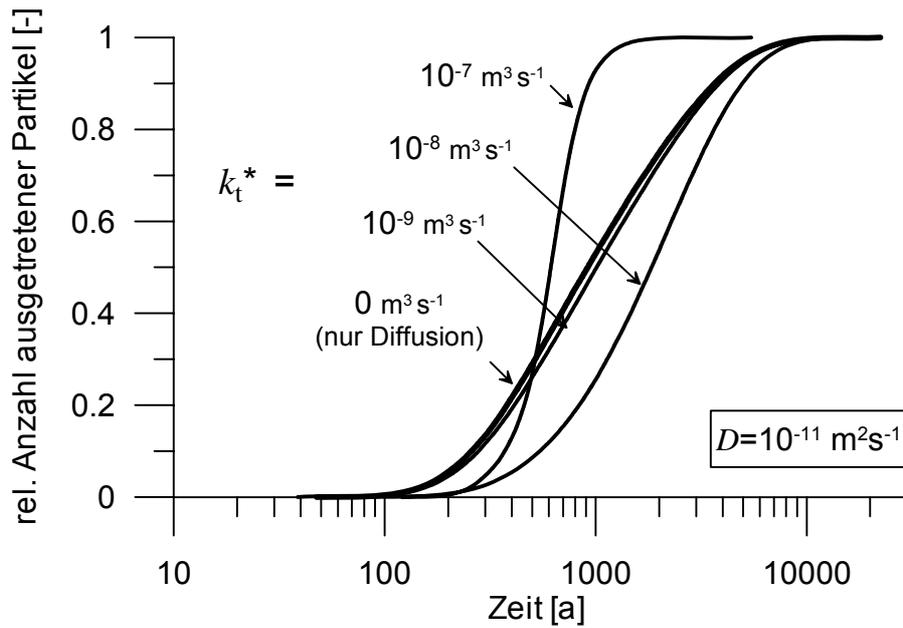


Abb. 5.16: Durchbruchkurven für $D = 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ und verschiedene Werte der initialen reskalierten thermoosmotischen Durchlässigkeit (IRTD) k_t^* .

5.4 Diskussion

Die Vernachlässigung von Prozesskopplungen bei der Beschreibung des thermoosmotischen Transportes sowie die angenommene Konstanz der hydraulischen Durchlässigkeit beschränkt das vorgestellte numerische Modell auf den Transport in gesättigten Medien. Mit einem durch Temperaturgradienten angetriebenen Transport freigesetzter Radionuklide ist auch bei niedrigen Wassersättigungen zu rechnen; zur Beschreibung dieser Vorgänge sind jedoch komplexere Modellansätze erforderlich /THO 92, YON 90/.

Die größte Unsicherheit bezüglich der Modellparameter besteht hinsichtlich der thermoosmotischen Durchlässigkeit für gesättigte Tone bzw. Tonsteine. Es scheint nahe zu liegen, dass die hohen thermoosmotischen Durchlässigkeiten, die von Srivastava und Avasthi /SRI 75/ für Kaolinit gemessen wurden, nicht für ein Endlagersystem gelten, da dieser Stoff mineralogisch weder starke Ähnlichkeiten mit der technischen Tonbarriere noch mit dem Wirtsgestein hat. Derzeitig ist jedoch noch weitgehend unerforscht, in welchem Ausmaß die Tonmineralogie die thermoosmotische Durchlässigkeit in gesättigten Tonen kontrolliert. Zum jetzigen Zeitpunkt kann daher noch keine Entscheidung darüber getroffen werden, welche thermoosmotische Durchlässigkeiten in einem Endlager zu erwarten sind. Bestätigen sich allerdings Werte von $10^{-14} \text{ m}^2\text{K}^{-1}\text{s}^{-1}$, wie sie von Dirksen für Na-Bentonit ermittelt wurden /DIR 69/, so legen die Modellrechnungen nahe, dass in gesättigten Tonen der diffusive Transport dominant ist.

Der Vergleich der Rechenfälle 2 und 3 zeigt, dass das thermoosmotisch induzierte Strömungsfeld stark von der geometrischen Anordnung der Festpotenzialränder bzw. der permeablen Strukturen innerhalb des Temperaturfeldes abhängt. Der Partikeltransport ist damit von der Endlagerauslegung abhängig, die je nach Endlagerkonzept sehr variabel sein kann. Ebenso hängt der Partikeltransport von der Anzahl und Anordnung der Wärmequellen ab. Die Wirkung solcher Variabilitäten konnte im Rahmen des vorliegenden generischen Endlagermodells nicht behandelt werden.

Den Annahmen des numerischen Modells liegen keine konservativen Abschätzungen zugrunde. Einige Annahmen unterschätzen die Transportwirkung der Thermoosmose, andere überschätzen sie. Das numerische Modell ermöglicht zwar eine erste Abschätzung des thermoosmotischen Transports in gesättigten Medien, erlaubt aber aus dem genannten Grund keine konservative Eingrenzung der Transportwirkung.

Durch folgende Modellannahmen wird der thermoosmotisch bedingte Partikeltransport unterschätzt:

- Stationäres Temperaturfeld

Vereinfachend wurde angenommen, dass sich das Temperatursignal der Wärmequelle mit unendlicher Geschwindigkeit ausbreitet (Wärmekapazität von 0). Unter realen Bedingungen ist die Reichweite der durch die Wärmequelle verursachten Temperaturstörung jedoch begrenzt. Da in diesem Fall die Temperaturen über kürzere Distanzen abfallen, dürften im Modell die thermoosmotischen Flüsse in der Nähe der Wärmequelle (Rechenfall 2 und 3) unterschätzt und in weiterer Entfernung (Rechenfall 1) überschätzt worden sein. Für den Partikeltransport bedeutet dies, dass die Temperaturgradienten am Aufenthaltsort der Partikel generell unterschätzt worden sein dürften, da der Wärmetransport in stark undurchlässigen Medien i.d.R. schneller als der Stofftransport abläuft /YON 90, MOH 93/.

- Hohe Wärmeleitfähigkeiten

Dem Wertebereich für die initiale reskalierte thermoosmotische Durchlässigkeit wurde die Wärmeleitfähigkeit des gesättigten Opalinustons zugrunde gelegt. Geringere Wärmeleitfähigkeiten und damit erhöhte Temperaturgradienten, welche die Thermoosmose fördern, sind in ungesättigtem Bentonit zu erwarten.

- Erniedrigte Abstandsgeschwindigkeit

Die Abstandsgeschwindigkeit der Partikel wurde der Filtrationsgeschwindigkeit des Fluids gleichgesetzt und damit unterschätzt.

Folgende Modellannahmen überschätzen den thermoosmotischen Transport:

- Sofortige Freisetzung

Die numerischen Simulationen gehen von einer sofortigen Freisetzung der Partikel aus. Mit zunehmender Lebensdauer der Abfallbehälter verlieren Thermoosmotische Transportprozesse jedoch an Relevanz.

- Konstante Wärmeleitfähigkeiten

Eine erhöhte Wärmeleitfähigkeit in höherpermeabler Zonen würde die Temperaturänderungen entlang dieser Zonen und damit die thermoosmotischen Flüsse abschwächen.

- Nichtretardierte Partikel

Für den Partikelaustrag aus einer Versatzkammer (Rechenfall 2 und 3) ist die Migrationsdauer von Bedeutung. Der Austrag ist umso stärker diffusionsdominiert, je länger der Partikelaustrag benötigt, da die Wärmeproduktionsrate der Abfälle mit der Zeit abnimmt. Mit zunehmender Retardation der Partikeln dürfte daher die Thermoosmose an Transportrelevanz verlieren.

- Annahme konnektiver Kluffnetzwerke in der Auflockerungzone (Versatzkammer)

In den Rechenfällen 2 und 3 wurden die Versatzkammern von durchgängigen hochpermeablen Zonen umrandet. Liegen Auflockerungszonen vor, die eine geringere Kluft-Konnektivität vorweisen, so ist mit kleinräumigeren Zirkulationsströmungen zu rechnen.

- Zeitlich konstante hydraulische Durchlässigkeiten von Auflockerungszonen

In den Rechenfällen 2 und 3 wurde von einer zeitlich konstanten hydraulischen Durchlässigkeit der Auflockerungszonen ausgegangen. In tonigen Wirtsgesteinen führen hydromechanische Prozesse jedoch mit der Zeit zu einer Selbstheilung der Auflockerungsklüfte.

5.5 Fazit

Anhand eines numerischen Modells wurden thermoosmotische Flüsse und advective Kompensationsflüsse untersucht, wobei von stationären, gesättigten Bedingungen sowie einer konstanten Fluidichte und Viskosität ausgegangen wurde. Die Simulationsergebnisse unterstützen die zuvor getroffene allgemeine Feststellung, dass Wärmequellen in einem fluidquellenfreien Gebiet hydraulisch unkompensierte thermoosmotische Flüsse erzeugen können. Sie belegen ferner, dass dies auch im speziellen Fall eines Endlagersystems möglich sein kann, wobei die Stärke der unkompensierten thermoosmotischen Flüsse sowie die Transportwege von der Ausrichtung der Festpotenzialränder bzw. der höherpermeablen Zonen relativ zur Wärmequelle abhängen. Da den Modellvereinfachungen keine konservativen Abschätzungen zugrunde liegen, erlauben die numerischen Rechenergebnisse keine Eingrenzung des möglichen Transports durch Thermoosmose. Als erste Näherung der Transportprozesse legen sie jedoch nahe, dass die Wirkung der Thermoosmose auf die Verteilung freigesetzter Partikel noch nach 10^6 Jahren nennenswert sein kann, selbst wenn die Wärmeproduktionsrate der Abfälle mit der Zeit abklingt. Im Rahmen des vorgestellten Modells können auch kleine Temperaturgradienten, wenn sie über lange Zeiträume wirken, zu einem nennenswerten thermoosmotischen Transport führen. Demnach könnte Thermoosmose auch im Falle einer verzögerten Freisetzung von Radionukliden aus den Abfallbehältern relevant sein.

6 Schlussfolgerung

Im vorliegenden Bericht wurde die Möglichkeit eines thermoosmotischen Radionuklidtransportes im gesättigten tonigen Wirtsgestein und in einer gesättigten Bentonitbarriere untersucht. Anhand analytischer und numerischer Berechnungen der stationären thermoosmotisch-advektiven Strömung wurde unter Annahme konstanter Fluiddichte und Viskosität gezeigt, dass Wärmequellen in einem fluidquellenfreien Gebiet unkompenzierte thermoosmotische Flüsse erzeugen können. Dies steht im Gegensatz zu früheren Arbeiten, die davon ausgehen, dass unter stationären Bedingungen eine vollständige hydraulische Kompensation der thermoosmotischen Flüsse infolge der Massenerhaltung des Fluids stattfindet /OLI 86, CAR 86, SOL 99, SOL 01, MAZ 03/. Träfe dies zu, so bliebe nach Soler /SOL 01/ eine mögliche Relevanz der Thermoosmose auf die instationäre Phase nach Einbringung der Abfallbehälter beschränkt. Der vorliegende Bericht zeigt hingegen, dass auch in der stationären Phase ein thermoosmotischer Transport möglich ist. In Anbetracht der potenziell hohen thermoosmotischen Flussdichten bleibt die Sicherheitsrelevanz der Thermoosmose für diese Phase der Endlagerentwicklung daher weiterhin zu prüfen.

Die vorliegende Untersuchung zeigt, dass der thermoosmotische Effekt zur Durchströmung eines Gebietes oder zu Zirkulationsströmungen innerhalb eines Gebietes führen kann. Zirkulationsströmungen können entstehen, wenn ein inhomogenes Temperaturfeld und inhomogene thermoosmotische oder hydraulische Durchlässigkeiten vorliegen. Zur Durchströmung eines Gebiets kommt es, wenn Fluidquellen bzw. –senken, die sich am Gebietsrand befinden, unterschiedliche Temperaturen aufweisen. Voraussetzung für die Entstehung transportwirksamer thermoosmotischer Flüsse ist demnach nicht nur das Vorhandensein von Fluidquellen oder Zonen mit inhomogenen Durchlässigkeiten, sondern auch eine geeignete räumliche Anordnung dieser Elemente im Temperaturfeld. Dass dies in einem Endlagersystem der Fall sein kann, zeigen die numerischen Simulationsergebnisse an den Beispielen einer vertikalen Einlagerungskammer, die von aufgelockertem Wirtsgestein begrenzt wird, und eines Endlagersystems mit einer ausgedehnten höherpermeablen Struktur. Der thermoosmotisch induzierte Transport findet in den Beispielen i.w. über Zirkulationsströmungen statt. Im Regelfall beschleunigt der thermoosmotische Effekt den Partikelaustrag; im Sonderfall kann eine Verlangsamung verzeichnet werden. Trotz der zeitlich begrenzten Wärmeproduktion der Abfälle ist der Einfluss der Thermoosmose auf den Partikeltransport noch nach 10^6 Jahren sichtbar. Im Rahmen des vorgestellten Modells führen auch kleine Temperaturgradienten, die über lange Zeiträume wirken, zu einem nennens-

werten thermoosmotischen Transport. Demnach könnte Thermoosmose auch im Falle einer verzögerten Freisetzung von Radionukliden aus den Abfallbehältern ein relevanter Transportprozess sein.

Die thermoosmotischen Durchlässigkeiten der Tone, die in einem Endlager auftreten, sind derzeit weitgehend unbekannt. Zur weiteren Klärung der Relevanz der Thermoosmose in der gesättigten Phase der Endlagerentwicklung sind daher experimentelle Untersuchungen der thermoosmotischen Durchlässigkeit erforderlich. Diese sind möglichst unter Temperaturen und Temperaturgradienten durchzuführen, wie sie nach weitgehendem Abschluss der Aufsättigungsphase auftreten.

Die im vorliegenden Bericht vorgestellten numerischen Rechnungen dienen in erster Linie der Untersuchung advektiver Kompensationsflüsse und ihrer Wirkung auf den Radionuklidtransport. Wie in Abschnitt 5.4 diskutiert wurde, lassen die vereinfachenden Modellannahmen jedoch einige Prozesse und Materialeigenschaften unberücksichtigt, deren Einfluss auf den thermoosmotischen Transport möglicherweise signifikant sein könnte. Zur Klärung der Relevanz der Thermoosmose sind daher weiterführende numerische Modellrechnungen erforderlich. Hierbei sollten u.a. folgende Aspekte betrachtet werden:

- Instationärer konduktiver und advektiver Wärmetransport, realistischere Wärmequellen und Wärmeleitfähigkeiten (insbesondere in höherpermeablen Strukturen).
- Einfluss hydraulischer Inhomogenitäten in der EDZ auf die Skala der Zirkulationsströmung. Zeitabhängige hydraulische Eigenschaften der EDZ (Selbstheilung).
- Dreidimensionale Transportmodellierung. Betrachtung verschiedener Anordnungen von Festpotenzialen und höherpermeablen Zonen.
- Retardation von Radionukliden.
- Temperaturabhängige Fluidichte und –viskosität.
- Einfluss des Freisetzungzeitpunktes auf den Partikelaustrag.

Weiterführende Untersuchungen dieser Aspekte sind am Kölner Standort der GRS im Rahmen des Vorhabens SR2451 möglich. Hierfür bietet sich eine Erweiterung des Codes TOUGH2 um den Effekt der Thermoosmose an. TOUGH2 erlaubt u.a. die dreidimensionale Modellierung des Wärme- und Stofftransportes unter Berücksichtigung temperaturabhängiger Dichte und Viskosität. Die Radionuklid-Retardation

kann durch nichtlineare Sorptionsisothermen beschrieben werden. Durch die Fähigkeit zur Modellierung der klassischen 2-Phasen Strömung in porösen Medien bietet TOUGH2 außerdem einfache Ansätze zur Behandlung des ungesättigten Transportes in Tonen.

7 Literatur

- /BMU 00/ Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU): Vereinbarung zwischen der Bundesregierung und den Energieversorgungsunternehmen vom 14. Juni 2000. – 2000.
- /CAR 65/ Cary, J. W.: Water flux in moist soil: thermal versus suction gradients. – Soil Science, 100 (3.2), 169-175, 1965.
- /CAR 66/ Cary, J. W.: Soil moisture transport due to thermal gradients: practical aspects. – Soil Sci. Soc. Amer. Proc., 30, 417-420, 1966.
- /CAR 84/ Carnahan, C. L.: Thermodynamic coupling of heat and matter flows in near-field regions of nuclear waste repositories. – Mat. Rec. Soc. Symp. Proc., 26, 1023-1030, 1984.
- /CAR 85/ Carnahan, C. L.: Thermodynamically coupled mass transport processes in a saturated clay. – Proc. Mat. Res. Soc. Symp. 44, S. 491 – 498, 1985.
- /CAR 86/ Carnahan, C. L.: Thermal osmosis near a buried heat source. – international communications in heat an mass transfer, 13, 659-664, 1986.
- /CAR 89/ Carnahan, C. L.: Theory and Calculation of Water Distribution in Bentonite in a Thermal Field. – Mat. Res. Soc. Symp. Proc., 127, 729-734, 1989.
- /DER 87/ Derjaguin, B. V., Churaev, N. V., Muller, V. M.: Surface forces. – Consultants Bureau, New York, London, 1987.
- /DIR 69/ Dirksen, C.: Thermo-osmosis through compacted saturated clay membranes. – Soil Sci. Soc. Am. Proc., 33(3.6), 821-826, 1969.
- /HOR 96/ Horseman, S. T., Higgs, J.J.W., Alexander, J., Harrington, J.F.: Water, gas and solute movement through argillaceous media. – OECD-NEA-Clay Club, Report CC-96/1, 1996.

- /JOH 02/ Johnson, L.H.; Niemeyer, M.; Klubertanz, G., Siegel, P., Gribi, P.: Calculations of the Temperature Evolution of a Repository for Spent Fuel, Vitrified High-Level Waste in Opalinus Clay. – Nagra Technischer Bericht 01-04, 2001.
- /KAH 85/ Kahr, G., Hasenpatt, R., Müller-Vonmoos, M.: Ionendiffusion in hochverdichtetem Bentonit. – Nagra Technischer Bericht 85-23, 1985.
- /LET 68/ Letey, J.: Movement of water through soil as influenced by osmotic pressure and temperature gradients. – Hilgardia, 39(14), 405-417, 1968.
- /MAD 91/ Madsen, F. T., Kahr, G.: Diffusion von Eisen- und Jodid-Ionen in hochverdichtetem Bentonit. – Nagra Technischer Bericht 91-28, 1991.
- /MAZ 03/ Mazurek, M., Pearson, F.J., Volckaert, G., Bock, H.: FEPCAT project: features, events and processes evaluation catalogue for argillaceous media. – Nuclear Energy Agency, Radioactive Waste Management, 2003.
- /MOH 93/ Mohamed, A. M. O., Yong, R. N.: Temperature and moisture distributions in a clay buffer material due to thermal gradients. – Mat. Res. Soc. Symp. Proc., 294, 417-424, 1993.
- /NAG 02a/ NAGRA: Projekt Opalinuston, Synthese der geowissenschaftlichen Untersuchungsergebnisse, Entsorgungsnachweis für abgebrannte Brennelemente, verglaste hochaktive sowie langlebige mittelaktive Abfälle. – NAGRA Technischer Bericht 02-03, 2002.
- /NAG 02b/ NAGRA: Projekt Opalinuston, Konzept für die Anlage und den Betrieb eines geologischen Tiefenlagers, Entsorgungsnachweis für abgebrannte Brennelemente, verglaste hochaktive sowie langlebige mittelaktive Abfälle. – NAGRA Technischer Bericht 02-02, 2002.
- /OLI 86/ Oliver, D. L. R.: Effects of thermal osmosis near a buried isolated heat sphere. – int. comm. heat mass transfer, 13, 295-304, 1986.
- /PHI 57/ Philip, J. R., de Vries, D. A.: Moisture movement in porous materials under temperature gradients. – Trans. Am. Geophys. Union, 2, 222-232, 1957.

- /SOL 99/ Soler, J. M.: Coupled transport phenomena in the opalinus clay: implications for radionuclide transport. – Paul Scherrer Institute, Waste Management Laboratory, PSI Report No. 99-07, 1999.
- /SOL 01/ Soler, M.: The effect of coupled transport phenomena in the Opalinus clay and implications for radionuclide transport. – Journal of Contaminant Hydrology, 53, pp. 63-84, 2001.
- /SRI 75/ Srivastava, R. C., Avasthi, P. K.: Non-equilibrium thermodynamics of thermo-osmosis of water through kaolinite. – Journal of Hydrology, 24, 111-120, North-Holland Publishing Company, Amsterdam, 1975.
- /THO 92/ Thomas, H. R.: On the development of a model of coupled heat and moisture transfer in unsaturated soil. – Can. Geotech. J., 29, 1107-1112, 1992.
- /YON 90/ Young, R. N., Mohamed, A. M. O., Xu, D. M.: Coupled heat-mass transport effects on moisture redistribution prediction in clay barriers. – Engineering geology, 28, 315-324, 1990.

Anhang A Modellbeschreibung

Implementierung: Die Implementierung erfolgte in der Programmiersprache C. Zur Diskretisierung und numerischen Lösung der Differenzialgleichung wurden keine bestehenden Programme oder Programmbibliotheken genutzt.

Gleichungssystem: Die zu lösende Differenzialgleichung ergibt sich aus den folgenden Gleichungen:

$$J_t = -k_t \cdot \nabla T \text{ (thermoosmotischer Fluss)}$$

$$J_h = -k_h \cdot \nabla h \text{ (advektiver Fluss)}$$

$$\text{div}(J_h + J_t) = 0 \text{ (Erhaltungsgleichung für das Fluidvolumen)}$$

J_t	thermoosmotische Volumenflussdichte [ms^{-1}]
k_t	thermoosmotische Durchlässigkeit [$\text{m}^2\text{K}^{-1}\text{s}^{-1}$]
T	Temperatur [K]
J_h	advektive Volumenflussdichte [ms^{-1}]
k_h	hydraulische Durchlässigkeit [ms^{-1}]
h	hydraulisches Potenzial [m]

Diskretisierung: Bilanzmethode (control volume method)

Gleichungslöser: Gauß-Seidel-Verfahren mit sukzessiver Überrelaxation.

Modellgebiet: 2-dimensionales rechteckiges Gitter mit 100 x 100 rechteckigen Elementen. Das Gebiet wird durch Festpotenzial-Elemente oder undurchlässige Elemente begrenzt.

Partikeltransport: Diffusiv durch Random-Walk (homogene Diffusivität), advektiv durch Particle-Tracking (keine hydrodynamische Dispersion).

Temperaturfeld: Das vorgegebene zweidimensionale Temperaturfeld ergibt sich als zweidimensionaler Schnitt durch ein stationäres dreidimensionales Temperaturfeld, wie es durch Wärmeleitung in der Umgebung einer sphärischen Wärmequelle erzeugt wird:

$$T(r) = \frac{Q}{4\pi \lambda r}$$

Q Wärmeproduktionsrate [W]

λ Wärmeleitfähigkeit [W m⁻¹ K⁻¹]

r Abstand von der Wärmequelle [m]

Der Abstand r eines Punktes (x, y) von einer Wärmequelle, die sich an der Position (x_0, y_0) befindet, beträgt

$$r(x, y) = \sqrt{(x - x_0)^2 + (y - y_0)^2}.$$

Zeitabhängigkeit des Temperaturfeldes: Die Wärmeproduktionsrate Q während des Partikeltransportes wird als zeitabhängige Größe $Q(t) := Q_0 \cdot \varphi(t)$ beschrieben, wobei Q_0 die initiale Wärmeproduktionsrate und $\varphi(t)$ eine Abklingfunktion ist. Die zeitliche Änderung der Wärmeproduktionsrate wirkt sich ohne Verzögerung auf das Temperatur- und Strömungsfeld aus (entspricht Wärmekapazität von 0).

Modellparameter: Mit oben definiertem Temperaturfeld ergibt sich für die thermoosmotische Flussdichte

$$J_t = -\frac{k_t Q_0}{4\pi \lambda} \varphi(t) \nabla \frac{1}{r(x, y)}.$$

Damit ist der Partikeltransport nur von den folgenden 3 Parametern abhängig:

- Initiale reskalierte thermoosmotische Durchlässigkeit (IRTD)

$$k_t^* := \frac{k_t Q_0}{\lambda} \quad [\text{m}^3 \text{s}^{-1}]$$

- Abklingfunktion $\varphi(t)$ mit $\varphi(0) = 1$ (dimensionslos)
- Diffusivität D [m² s⁻¹]

Anhang B Modelltests

7.1 Advektiver Fluss

Modellparameter

Modellgebiet	100 x 100 Elemente Ausdehnung in x- und y-Richtung: 1 m
Randbedingungen	Oberer und unterer Rand geschlossen Linker Rand: festes hydraulisches Potenzial von 1 m Rechter Rand: festes hydraulisches Potenzial von 0 m
Materialparameter	$k_h = 1 \text{ m/s}$ $k_t = 1 \text{ m}^2\text{K}^{-1}\text{s}^{-1}$
Temperaturfeld	$T(x,y) = 0 \text{ K}$

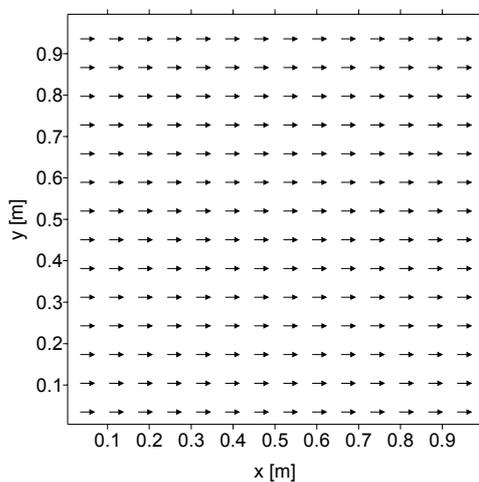
Gleichungslöser

maximaler absoluter Fehler der Flussdichte (Abbruchkriterium)	1,253304e-07 m/s
maximaler relativer Fehler der Flussdichte	1,253304e-07 m/s

Ergebnis

Fluss in Festpotenzialränder	berechnet: 9,999999e-01 m ² /s erwartet: 1 m ² /s
Fluss aus Festpotenzialrändern	berechnet: 1,000000e+00 m ² /s erwartet: 1 m ² /s

Strömungsvektoren



7.2 Thermoosmotischer Fluss

Modellparameter

Modellgebiet	100 x 100 Elemente Ausdehnung in x- und y-Richtung: 1 m
Randbedingungen	Oberer und unterer Rand geschlossen Linker Rand: festes hydraulisches Potenzial von 0 m Rechter Rand: festes hydraulisches Potenzial von 0 m
Materialparameter	$k_h = 1 \text{ m/s}$ $k_t = 1 \text{ m}^2\text{K}^{-1}\text{s}^{-1}$
Temperaturfeld	$T(x,y) = (1 \text{ m} - x) \cdot 1 \text{ K}$

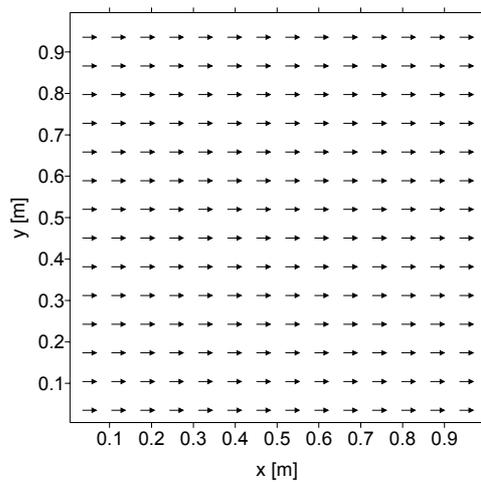
Gleichungslöser

maximaler absoluter Fehler der Flussdichte (Abbruchkriterium)	2,220446e-16 m/s
maximaler relativer Fehler der Flussdichte	2,220446e-16 m/s

Ergebnis

Fluss in Festpotenzialränder	berechnet: 1,000000e+00 m ² /s erwartet: 1 m ² /s
Fluss aus Festpotenzialrändern	berechnet: 1,000000e+00 m ² /s erwartet: 1 m ² /s

Strömungsvektoren



7.3 Diffusion

Modellparameter

Modellgebiet	100 x 100 Elemente Ausdehnung in x- und y-Richtung: 10 m
Randbedingungen	Alle Ränder: festes hydraulisches Potenzial von 0 m
Materialparameter	$k_h = 1 \text{ m/s}$ $k_t = 1 \text{ m}^2\text{K}^{-1}\text{s}^{-1}$
Temperaturfeld	$T(x,y) = 0 \text{ K}$
Diffusivität D	$1\text{e-}10 \text{ m}^2/\text{s}$
Dauer Diffusionsexperiment	$1 \text{ m}^2 / (2 D) = 5\text{e+}09 \text{ s}$
Partikelanzahl	$1\text{e+}06$

Gleichungslöser

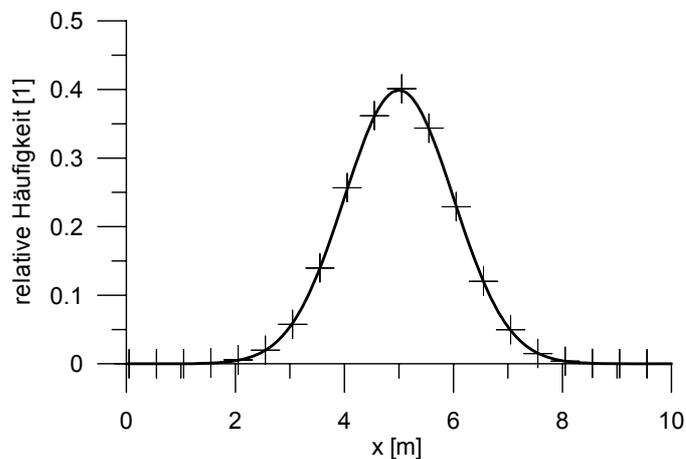
maximaler absoluter Fehler der Flussdichte	$0,000000\text{e+}00 \text{ m/s}$ (Die Anfangswerte $h_{ij} = 0$ lösen das Gleichungssystem)
--------------------------------------------	-------------------------------------------------------------------------------------------------

Ergebnis

Standardabweichung der Partikelverteilung σ	berechnet: $0,95 \text{ m} < \sigma \leq 1,05 \text{ m}$ erwartet: 1 m (für unendlich ausgedehntes Gebiet)
Fluss in Festpotenzialränder	berechnet: $0,000000\text{e+}00 \text{ m}^2/\text{s}$ erwartet: $0 \text{ m}^2/\text{s}$
Fluss aus Festpotenzialrändern	berechnet: $0,000000\text{e+}00 \text{ m}^2/\text{s}$ erwartet: $0 \text{ m}^2/\text{s}$

Partikelverteilung nach 5E+09 Sekunden

(Kreuze: Messwerte; durchgezogene Linie: analytische Lösung)



Verteiler

Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit

Referat RS III 2 5 x

Bundesamt für Strahlenschutz

AG 1 2 x

SE 3.4 (Herr Dr. Wollrath) 1 x

AG 3 1 x

Z, Bib 1 x

Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR) 2 x

Forschungszentrum Karlsruhe (FZK)

Projektträger PtWT+E 1 x

Institut für Nukleare Entsorgung (INE) 1 x

GRS

Geschäftsführer (hah, ldr) je 1 x

Bereichsleiter (brw, erl, erv, lim, tes, prg) je 1 x

Projektbetreuung (uhl) 1 x

Projektleitung (rkj) 2 x

Abteilung 4010 (moe) 1 x

Abteilung 5040 (reh) 1 x

Abteilung 6020 (rop) 1 x

Abteilung 7030 (bat) 1 x

Bibliothek (hog) 1 x

Autor (nav) 3 x

Gesamtauflage: 33 x